

年 月 日付で登録区分、  
2001. 6. -6  
[技術情報室]

# 燃料のやきしまり(Densification) について

Review of Fuel Densification

1974年8月

動力炉・核燃料開発事業団  
東海事業所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49  
核燃料サイクル開発機構  
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:  
Technical Cooperation Section,  
Technology Management Division,  
Japan Nuclear Cycle Development Institute  
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184  
Japan

行  
す  
の

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)  
2001

## 燃料のやきしまり (Densification) について



実施責任者 小 泉 益 通<sup>\*</sup>  
報告者 古 屋 広 高<sup>\*</sup>

### 要 旨

照射中の燃料では、構成原子の易動度は、核分裂片、中性子損傷により高くなる。この結果、照射中の燃料のやきしまり (Densification) は、未照射燃料に比べ、低い温度 (250°C ~ 1000°C) でも起る。

照射中燃料がやきしまると、1) スタック長が減少し、線出力が増加する、2) 被覆管-ペレット管の熱伝導率が低下する、ことによりペレット内の温度が高くなるとともに、蓄積エネルギーが増大し、安全上の考慮が必要となる。この他、スタック長減少時に、ペレットと被覆管が、機械的相互作用すると、ペレット管にキャップが生じ、つぶれ (Collapse) 引き起こす。

やきしまりの量について、米国を中心として精力的な研究、評価が行なわれた結果、現在、米国原子力委員会は、やきしまりの最終密度は96.5%であり、軸方向の減少率は、最大で体積収縮率の2分の1、半径方向の減少率は、最大で体積収縮率の3分の1であると結論づけている。

\* プルトニウム燃料部開発課

## 目 次

要 約	1
I 序 言	3
II 背 景	3
III やきしまりに影響を与える限界	8
1. ペレット初期密度	8
2. 線出力	8
3. 燃焼度	8
4. 被覆管内初期ガス圧	8
5. 製造条件	8
IV やきしまりが燃料照射挙動におよぼす影響	16
1. やきしまりの不均一性	16
2. やきしまりがおよぼす影響	16
3. ペレット間キャップの大きさと分布	16
4. サーマルスパイク	20
5. 線出力の増加	21
6. ペレット径の変化	21
V やきりまりの機構とスウェリング	22
1. やきりまりの機構	22
2. スウェリングとやきしまり	23
VI 高速炉における実験例	31
1. アルゴンヌ研究所での照射実験	31
2. ハンホードでの照射実験	31
VII 実際の燃料の評価(例, もんじゅ燃料)	32
VIII やきしまりの炉外評価	37
IX 結 論	39
参考文献	40

## 要 約

燃料のやきしまり (Densification) は、軽水炉において、燃料ピン挙動に、次の点で影響をおよぼす。

1. やきしまりの結果生ずるスタック長減少に伴う線出力の増加。
  2. 半径方向収縮のため生ずる被覆管一ペレットのギャップコンダクタンスの変化
  3. ペレット間に生ずるギャップに起因するサーマルスパイクおよび被覆管変形 (Collapse)
- 高速炉の場合、冷却材の圧力も低く、かつ中性子吸収も軽水炉と異なるので、3) の現象は生じない。

1)、2) の効果については、高速炉での実験結果が少く (EBR-II での照射実験のみ) 信頼性の高い評価は、困難であるが軽水炉と同様に考えると、次のようになる。

スタック長の変化率

$$\frac{\Delta L}{L} = \frac{0.965 - \rho_0}{2} \dots \dots \dots (1)$$

半径方向の変化

$$\frac{\Delta r}{r} = \frac{0.965 - \rho_0 + 2\sigma}{3} \text{ or } \frac{1}{3} \frac{\Delta \rho}{\rho_0} \dots \dots \dots (2)$$

ここに  $\rho_0$  : 初期密度

$\sigma$  : 標準偏差

一例として、もんじゅ燃料について評価すると

燃料ペレットの密度  $\rho_0 = 0.85$ 、標準偏差を常陽燃料製造時の値  $\sigma = 0.0005$  を採用すると、上の値はそれぞれ

$$\frac{\Delta L}{L} = 0.0575 = 5.75\%$$

$$\frac{\Delta r}{r} \doteq 0.0417 = 4.17\%$$

となる。

したがって、安全に関し、最も保守的な値として、この値が考えられる。

しかしながら、表 5 に示すように、EBR-II の照射実験では、燃料スタック長の減少は、85% 密度の燃料で 2.0~2.5%、90~95% 密度の燃料では無視できる程度であった。このことから、今後実際の燃料でのやきしまりの評価は、その燃料と同一の製造工程で作ったペレットを、次の方法で試験、評価後、行うべきである。

1) 炉外評価

1,700°C以上の温度で長時間加熱(24h以上)し、やきしまりの程度を予測する。

1) 照射実験

製造方法の異なった(出発粉末、焼結温度、焼 時間)ペレットの照射中での寸法および金相組織の変化の測定。

## I 序 言

燃料のやきしまり (Densification) は、燃料開発の初期の段階では、無視されてきた。これは、1) 研究者の関心がおもにスウェリングに注がれていた。2) 燃料ピン全長が短く、やきしまりが起きても大きな問題とならず発見するに至らなかった、3) 燃料ペレット密度が、比較的高いものを使用していた、等の理由によるものであった。

しかしながら、原子力発電の実用化が進み、スイスのベズナウ (Beznau) 1号炉、米国ギナー (Ginna) の原子炉で燃料棒につぶれ (collapse) が発見されて以来、まず PWR、次いで BWR で大きな関心を引くようになった。

本稿では、まずこれらの経過を、米国ギナー原子力発電所の例をとり説明し、ついでやきしまりに影響を与える因子およびこれに附随して起る現象を述べ、さらにやきしまりの機構とスウェリングの関連性について、若干の考察を行う。

最後に、これらをもとに、今後、燃料製造者、設計者が解明しなければならない点について検討する。

なお、高速炉の場合、EBR-II による照射実験のみしか報告されていないので、このデータを中心に考察する。

## II 背 景

1972年4月14日、米国Ginna原子力発電所の燃料交換を行った後、使用済集合体を検査したところ、多くの燃料棒に、図1に示すようなつぶれ (collapse) が発見された。これらの燃料の概略仕様、運転履歴を表1a、1cに、破損状況を表1bに示す。また、この異常発見を前後した、Ginna発電所の経過を以下に示す。1)

日時と項目	項目と内容
1969年11月 9日	臨界到達 米国内のPWR型原子炉としては、はじめて被覆材の全てがジルカロイを使った。
1969年11月 1970年 4月 (約5ヵ月)	一次冷却材の放射能強度5ヶ月間徐々に連続して上昇。 推測 (燃料被覆材からのリーク発生)
1970年4月 1971年2月 (約10ヵ月)	その後放射能強度は一定レベルに保持したまゝであった。
1971年 2月28日	炉運転停止。理由：タービンの定期点検 燃料検査 リーク発生の燃料棒発見 (原因は水素化物) 炉心の第3領域に配置してある集合体からリークしていた。 「Collapse」現象は発見されなかった。 燃料カラムの軸方向ギャップは確認された。 第3領域の燃料集合体 (12体) 新燃料と交換
1971年 3月	1,300 MW(t)出力レベルで運転。 その後 1,520 MW(t)レベルで運転。 冷却材の放射能強度再び上昇。
1972年 4月14日	炉運転関係のメンテナンス業務終了。 燃料交換終了。 集合体検査。多くの燃料棒に崩壊「Collapse」発見第2領域 曲り「bowing」発見 「Collapse」は「bowing」に関連性をなし。
1972年6月12, 20, 22	AECへ報告書提出。
1972年 6月	試験結果 (テレビ外観検査, 双眼鏡使用) 崩壊「Collapse」現象の特徴 ① 「Collapse」発生場所：燃料棒上部40%領域に分布 (燃料棒下端から30.48~35.56 cmの位置) ② 「Collapse」箇所の大きさ, 0.5~4.0インチ (12.7~101.6 mm) (この位置が燃料棒上部になるほど, 長さが大きくなっていった。) ③ 燃料集合体の外側に配列燃料棒の崩壊率領域(1)2%, (2)7.2%, (3)3.4% (4)0% 特定スタッフ・グループの炉運転に対するコメント ◎ 最大出力の83%に制御する。 ◎ 出力変化は許容速度以内で実施する。(出力の過渡的挙動に注意) ◎ 炉運転中の監視項目は守る。
1972年10月	初期炉心燃料全部交換。 新しく使用した全集合体 (48体) は全て加圧タイプ燃料棒。 この時の集合体照射後試験 10,000時間照射 加圧タイプ燃料棒については「Collapse」現象なし。
1972年11月	特定スタッフ・グループの調査報告書提出。



表1a Ginna炉の燃料ピン仕様と運転記録

	Region			
	1	2	3	4A
Number of Assemblies				
Cycle 1A (Initial fuel loading)	41	40	40	-
Cycle 1B (Loading after Feb. 1972 shutdown)	41	40	28	12
Rods per Assembly	179	179	179	179
Enrichment, % of U-235	2.44	2.78	3.48	3.20
Clad OD, (In.)	0.422	0.422	0.422	0.422
Diametral Fuel-to-Clad Gap Thickness, (mils)	6.5	6.5	6.5	6.5
Pellet Density, % Theoretical	94	92	90	92
Helium Prepressurized	No	No	No	Yes

表1b Ginna炉の燃料ピン検査結果

	Region			
	1	2	3	4A
Number of Assemblies Examined	20	22	11	1
Number of Fuel Rods Examined	1040	1144	572	52
Number of Rods with Collapsed Sections	21	83	20	0
Percent of Rods with Collapsed Sections	2.0	7.3	3.5	0

表1c Ginna炉の燃料ピン仕様と運転記録

	Region					
	1	2	3	4A	4	4B
Number of Assemblies						
Cycle 1B (Feb 72-Apr 72)	41	40	28	12	0	0
Cycle 2 (After April 72)	38	10	0	12	40	21
Rods per Assembly	179	179	179	179	179	179
Enrichment	2.44	2.78	3.48	3.20	3.14	2.90
Pellet Density	94	92	90	92	94	94
Helium Prepressurized	No	No	No	Yes	Yes	Yes

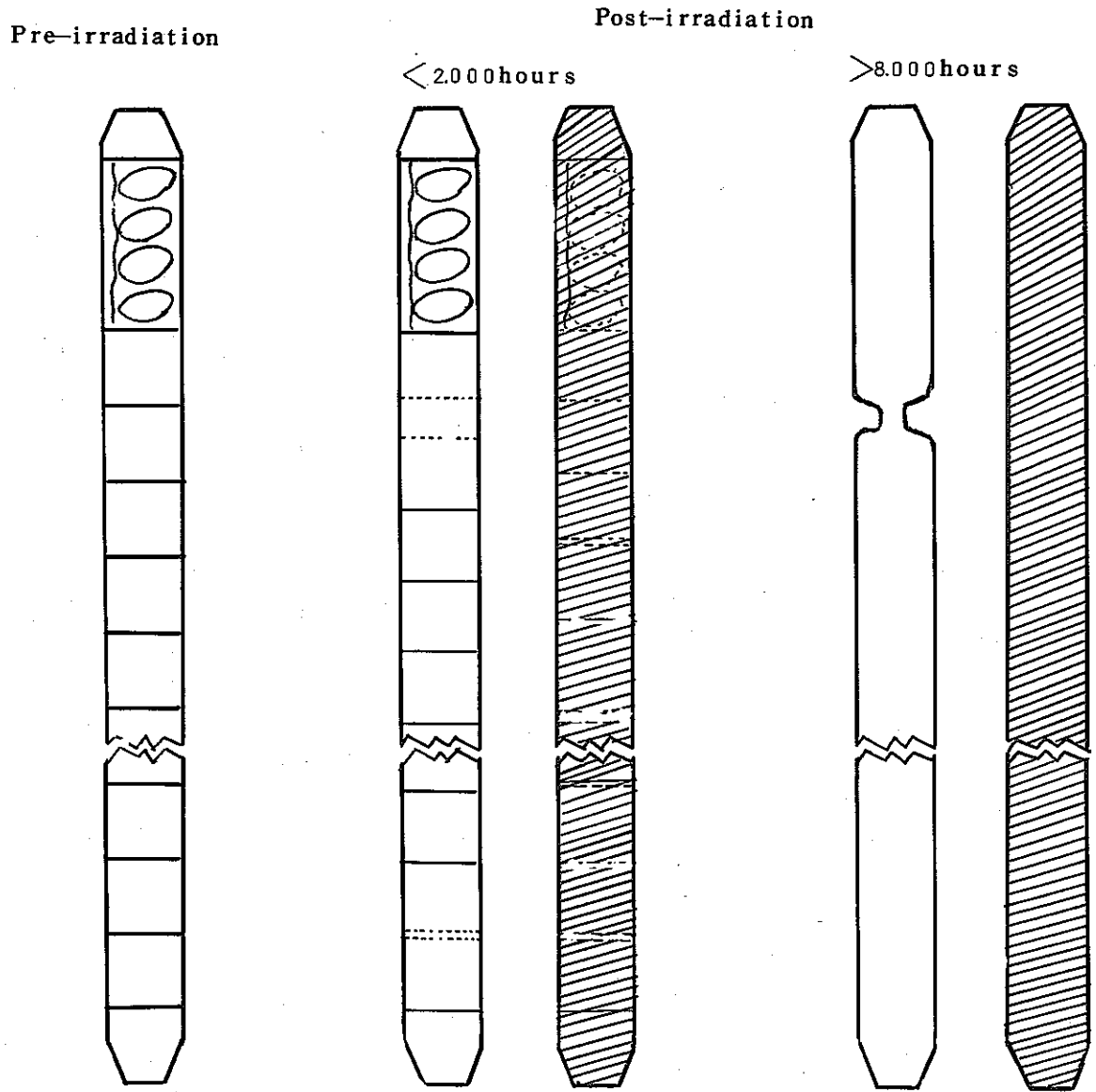


図1 燃料棒のつぶれ (Collapse)

被覆管のつぶれについてGinna発電所から報告をうけとったAECは、早速調査グループ(regulatory staff)を作り、原因探求を始めた。これらのスタッフ達は、調査対象を次の3つの項目におき、原因を追求した。

- (1) 燃料ピンの製造したウェスチングハウス社の燃料製造工程および品質管理方法の検討。
- (2) ジルカロイ被覆管の照射成長(irradiation growth)が、被覆管長さにとどの程度影響するか。
- (3) 燃料、被覆管の機械的相互作用(この場合、ペレットが被覆管に拘束(hang-up)、ペレットが連続したカラムを作ることができず、ペレット間にギャップが生ずること)の可能性。

先ず(1)については、イ)ペレットスタックは連続しており、長さは設計通り保持されている。ロ)全長X線写真および重量測定は、すべて許容限界内である。ハ)原子炉設置場所でのX線測定でもギャップがなかった。等の理由から問題がなかった。

次に(2)については、サクストン原子炉で照射した燃料棒の全数について、被覆管の長さを測定したところ、つぶれ(collapse)をおこした被覆管の長さは、健全なものより短く、かつ照射前後における被覆管の長さは、変化しなかったという事実から、照射成長は、ギャップ生成に関係しないことが結論づけられた。

最後に(3)については、燃料のやきしまりによる推定スタック長減少量が実測値と一致することから最も重要な要因の一つと考えられた。そして、つぶれの起る過る過程として、被覆管がクリーブダウンし、燃料カラムの一部と接触(hang-up)ペレットの連続した移動を阻止し、ギャップを生成する。こうしてできたギャップは、冷却材の圧力により、つぶれる(collapse)。このhang-upおよびつぶれは、被覆管肉厚、径、オーバリティ、冷却材圧力、中性子束、温度により異なり、BWRでは考える必要ない。

### Ⅲ やきしまり (Densification) に影響を与える現象

#### 1 ペレット初期密度

燃料の初期密度が低い程、やきしまり (Densification) の程度は、大きくなることは、単純に予想されるが、必ずしも予想通りにならない。このことは、燃料密度よりむしろ後述する製造方法が、やきしまりの程度に大きな影響を与えるからである。したがって、同一の方法で製造した燃料では、低い密度程よくやきしまるといえることができる。

図2にウエスチングハウス社がまとめた結果を示す。

#### 2 線出力

1,500～30,000時間照射した燃料の密度を水銀比重測定法で測定したところ、線出力1.5～17.0 kW/ft でやきしまりが起った。しかし、図3に示すように特に線出力への依存性は見いだされていない。<sup>1)</sup> この理由は、照射時間、燃料状態等が異なるため、スウェリングの影響が異なっていることに一因があると思われる。

#### 3 燃焼度

照射の開始と同時にやきしまりが始まる。やきしまりが完結するのは、使用するペレットにより異なるが、時間にして3,000時間、燃焼度にして6,000～10,000 MWD/T 程度である。ウエスチングハウス社がまとめたデータを図4に示す。<sup>1)</sup> 詳細なデータについては、製造条件、スウェリングと関連して後述する。

#### 4 被覆管内ガス圧

ウエスチングハウス社がまとめたデータを図5に示す。その図から被覆管内ガス圧とやきしまりには関連性がないことがわかる。<sup>1)</sup>

#### 5 製造条件

OECD Halden project の Hanevik と Arnesen は、DE-E (IFA-401) 実験シリーズで、製造条件がやきしまりにおよぼす影響を検討した。<sup>4)</sup> まず彼等は、表2に示すように、粉末調整、焼結温度、焼結時間を変え、密度87, 92, 95%の数種類のUO<sub>2</sub>ペレットを製造した。これらのペレットを、線出力190 W/cm (上端クラスター)、520 W/cm (下端クラスター)、ギャップ巾70～350μで照射し、照射中のスタック長の変化を連続的に測定した。彼等が実験した燃料棒内のペレット仕様を表3に、照射中で得た実験結果を表4、図6、7に示す。さらに、密度別に図示したものを図8に示す。彼等は、

これと平行して、照射前後におけるペレットの金相試験を行い、スタック長変化と組織変化と関連づけている。

これらの結果を総合して、彼等は次の結論を得た。

- (1) どんな燃料でもスタック長減少は生ずるが、安全な組織をもつ燃料ではごくわずかである。
- (2) スタック長変化の割合は、燃焼率（時間）と共に減少し、 $6,000 \sim 10,000 \text{ MWD/T}$ で、変化はとまる。
- (3) スタック長変化量は、主に燃料ペレットの組織的安定性（空孔分布、密度、空孔形状、空孔の大きさ等）に依存する。
- (4) 不安定な組織をもつペレットでは、線出力の影響は無視できるが、安定な組織をもつペレットでは、低い出力でわずかなスタック長変化が認められる。
- (5) 狭いギャップの燃料棒では、みかけ上のスタック長変化は、広いギャップ燃料棒より大きい。変化率は同じである。
- (6) 以上のことから、照射中におけるスタック長の減少は、最適な製造条件を選ぶことにより、最少にすることが可能である。

表 2. ハルデンの照射実験に用いたペレット特性

Structural Stability	Powder Treatment	Sintering Temp. (°C)	Sintering time (hours)	Mean Sintered Density (% T.D.)	O/U ratio
Unstable	1.5% Naphthalene UO <sub>2</sub> annealed at 1200 °C	1300	1	87	2.013
Metastable		1400	3	87	2.006
Stable		1600	5	87	2.006
Unstable	2% Naphthalene	1400	3	92	2.014
Stable		1600	5	92	2.002
Stable		1600	5	95	2.01

表 3. ハルデン照射実験に用いられた燃料棒特性

Cluster		Lower						Upper					
Rod No		201	202	203	204	205	206	207	208	209	210	211	212
Nominal Density %TD	95	x						x					
	92		x	x								x	x
	87				x	x	x		x	x	x		
Pellet Stability	Stable	x	x		x			x	x				
	Metastable						x						
	Unstable			x		x				x	x	x	x
Heat Rating	High							x	x	x	x	x	x
	Low	x	x	x	x	x	x						
Clearance	350/u	x	x	x	x	x	x	x	x	x		x	
	70/u										x		x

表4 ハルデン照射実験結果

Material Code	87U	87M	87S	92U	92S	95S			
Initial Density (%)	87	87	87	92	92	95			
Halden Rod No	<u>205</u>	<u>209</u>	<u>206</u>	<u>204</u>	<u>208</u>	<u>203</u>	<u>211</u>	<u>202</u>	<u>207</u>
	Density Increase (%)								
Burnup (MWd/MTU)									
20		1.85					0.22		
42	2.83		0.37	0.10		0.47		0.11	
54		3.35					0.50		
72		3.62					0.55		0.086
110	4.48		0.92	0.13		1.11		0.14	
112		4.34			0.08		0.83		0.200
124		4.34			0.08		0.83		0.200
144	4.87		1.08	0.18		1.28		0.14	
230	5.18		1.56	0.52		1.76		0.22	
266	5.83		1.67	0.52		1.82		0.22	
464		5.61			0.10		1.68		0.286
700		5.66			0.21		1.96		0.400
744		5.89			0.26		2.36		0.400
1226	6.00		2.72	1.26		2.73		0.55	
1350		5.89			0.42		2.42		0.400
1892	6.46		2.99	1.63		3.05		0.55	
1930		5.89			0.47		2.47		0.400
1991	6.58		2.99	1.75		3.16		0.50	
2340		5.95			0.58		2.70		0.429
3730	6.98		3.15	1.96		3.28		0.72	
4210	7.10		3.21	2.07		3.34		0.78	
4860	6.81		3.26	2.26		3.36		0.75	

NOTE: These data were obtained on rods with large (13.8mil-350  $\mu$ m) diametral gaps to eliminate pellet-clad mechanical interaction.

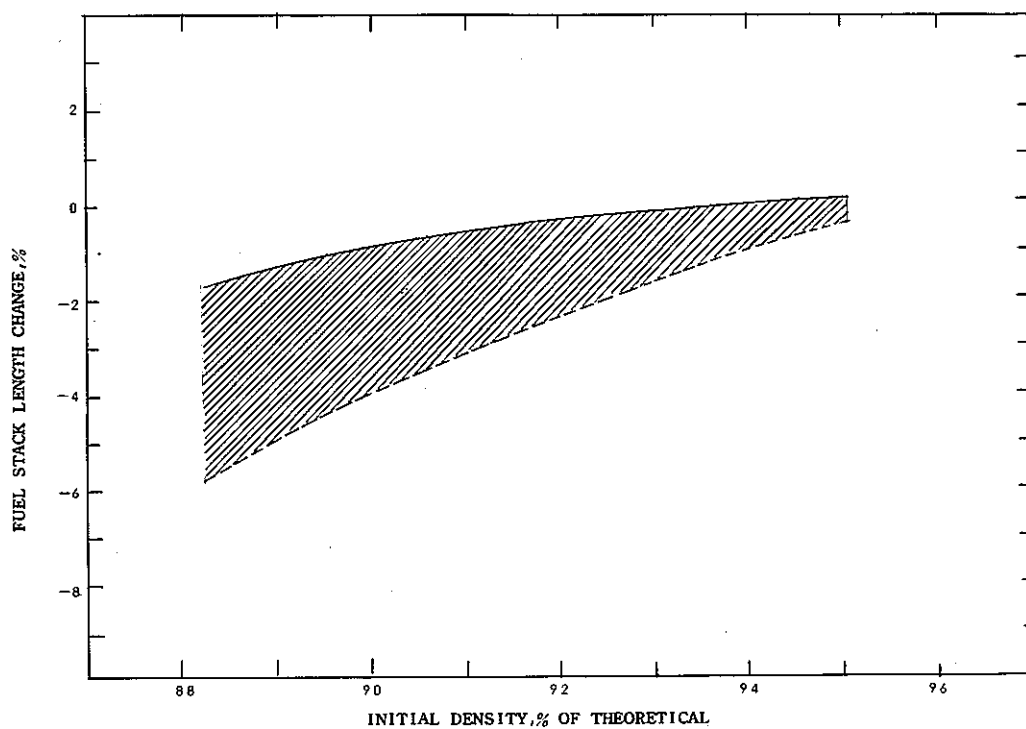


図2 燃料の初期密度のやきしまりにおよぼす影響

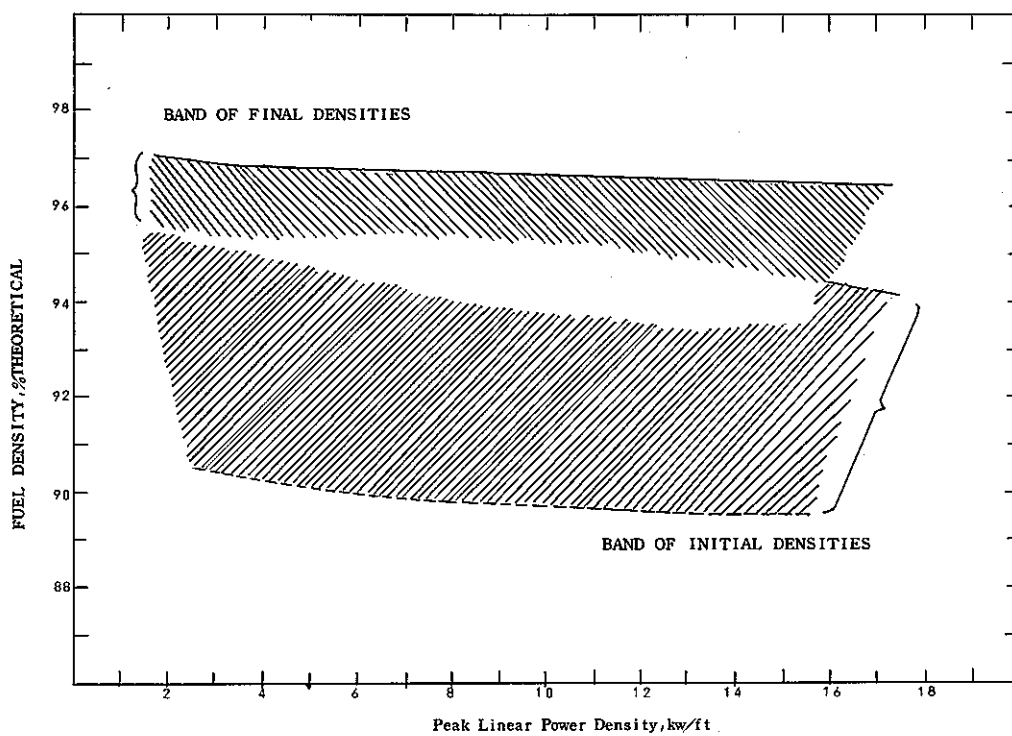


図3 線出力密度がやきしまりにおよぼす影響



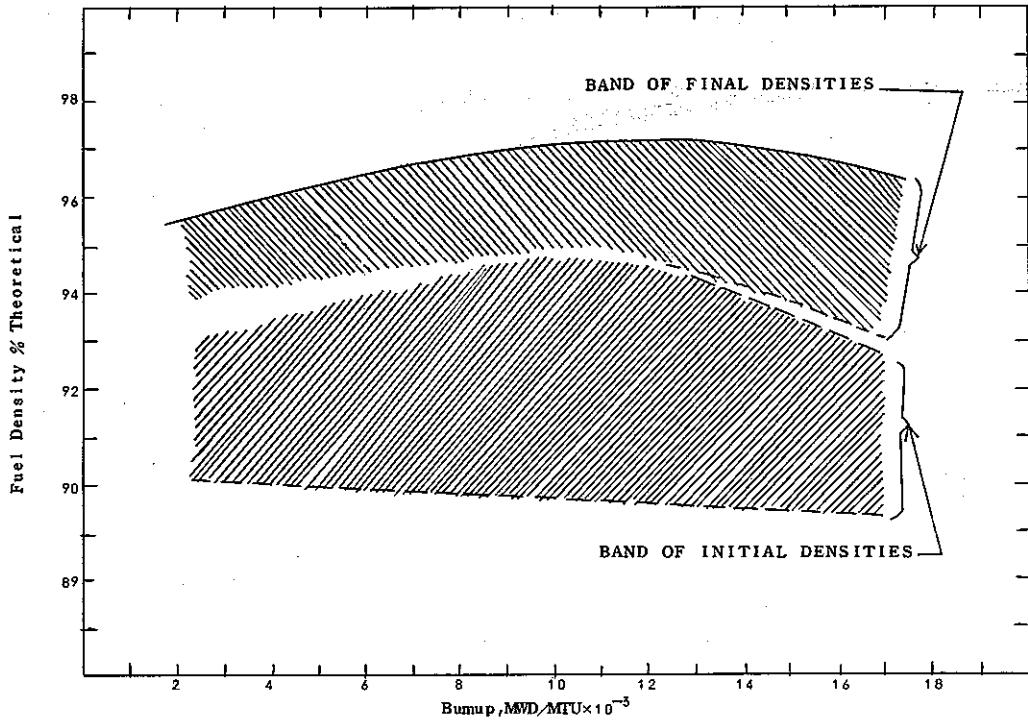


図4 燃焼度がやきしまりにおよぼす影響

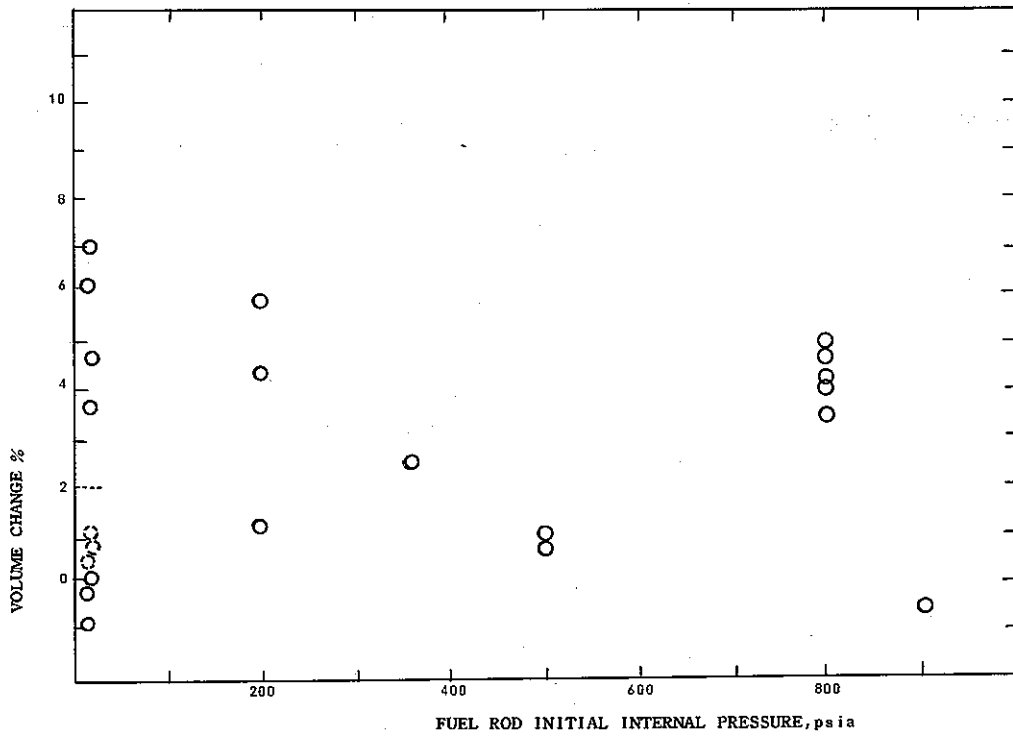


図5 被覆管内圧がやきしまりにおよぼす影響

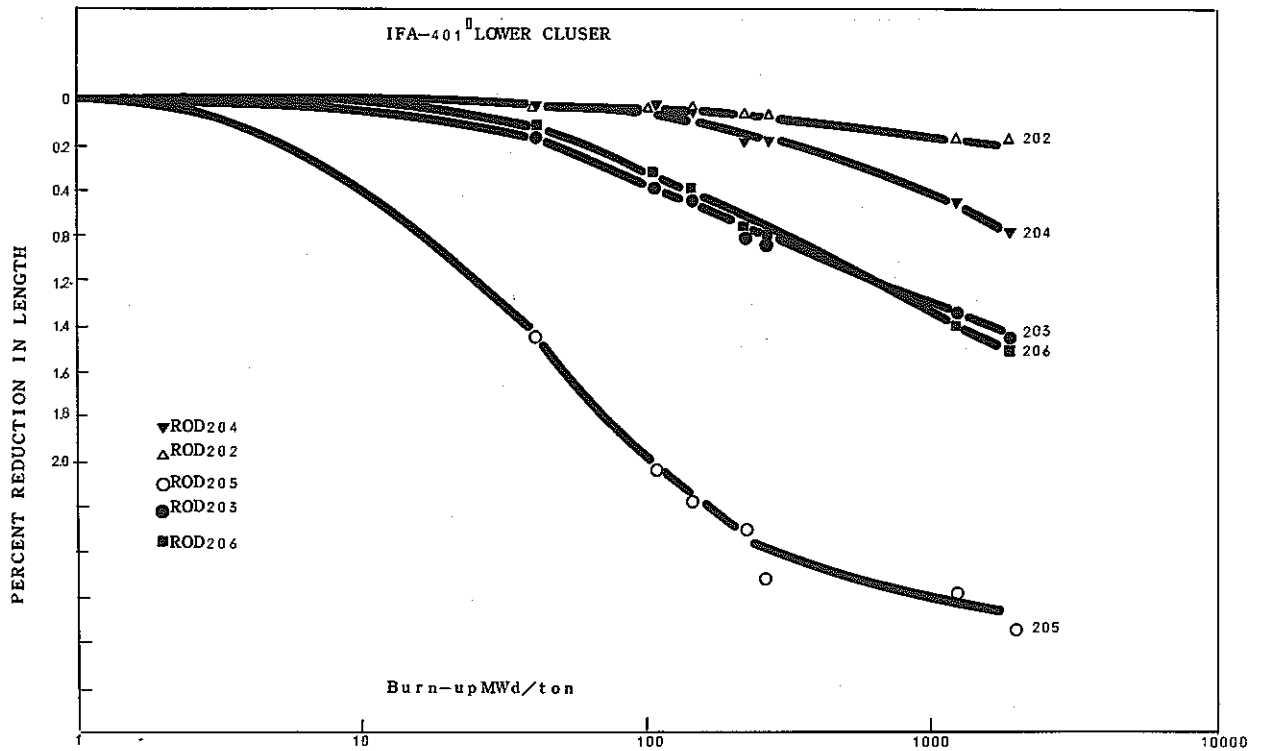


図6 燃焼度によるやきしまりの変化(ハルデン lower cluster)

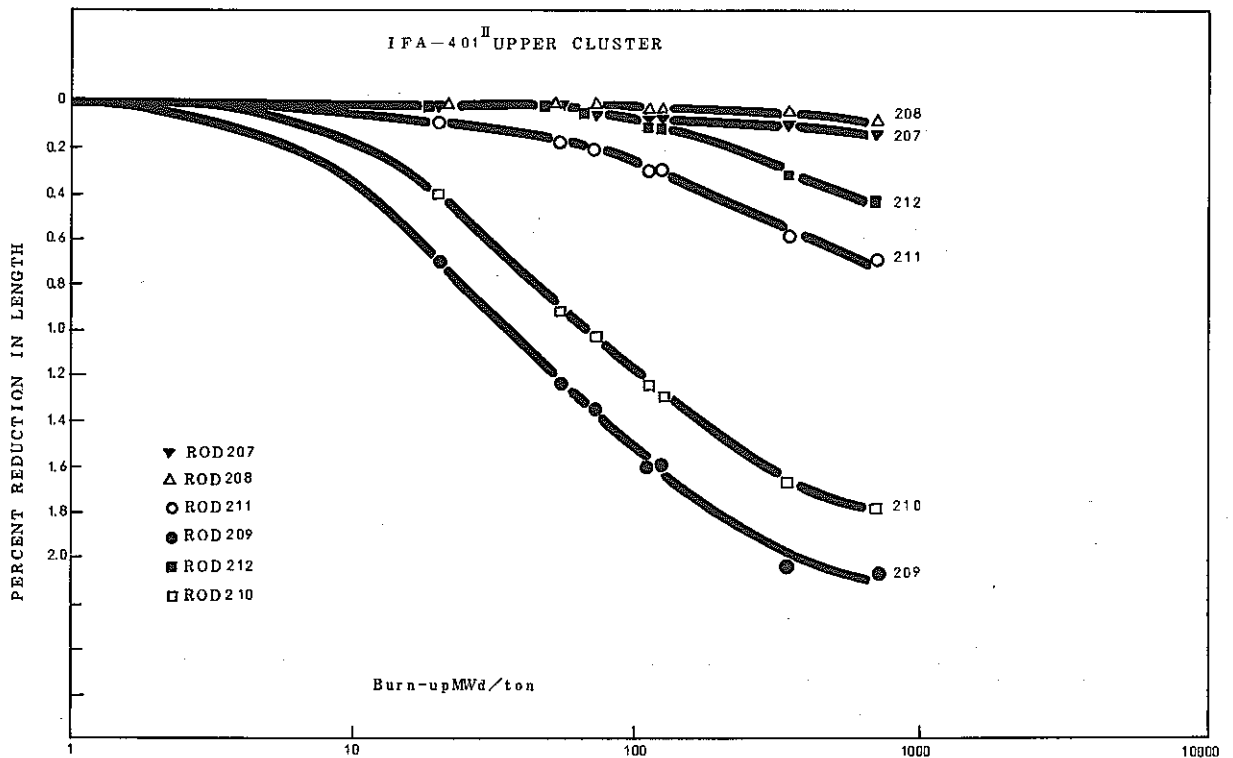
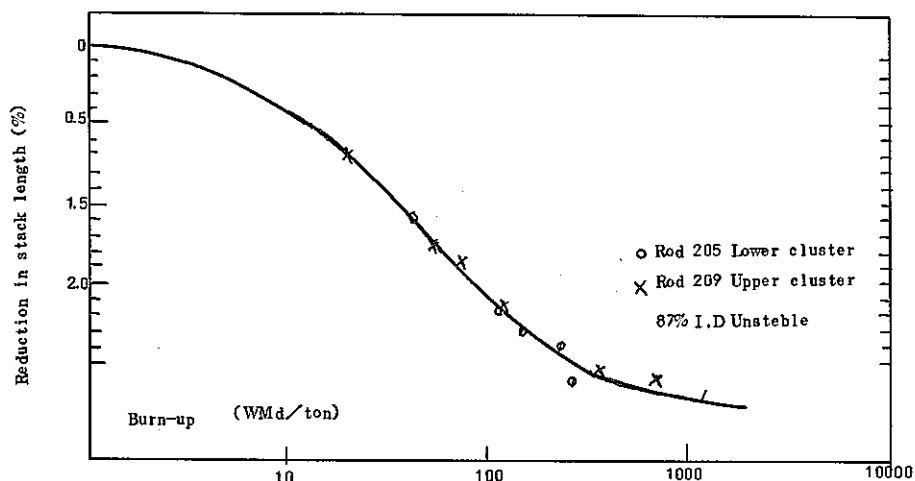
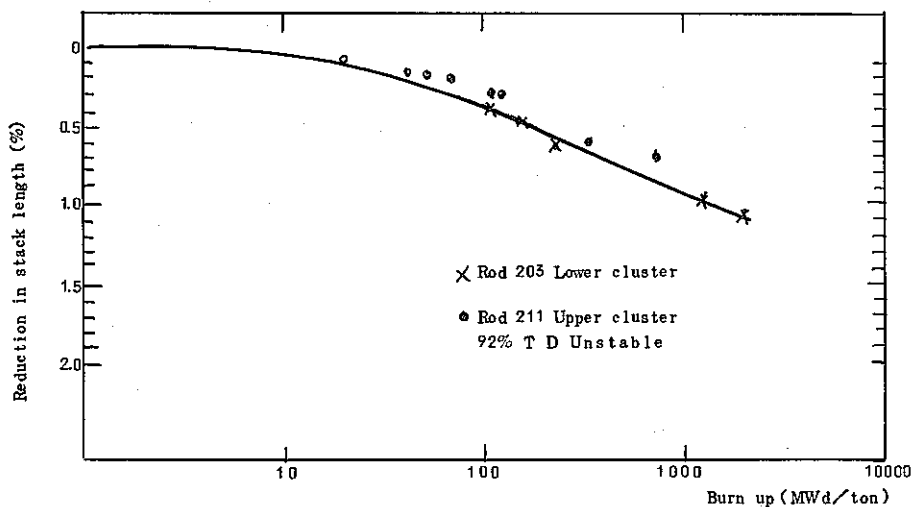


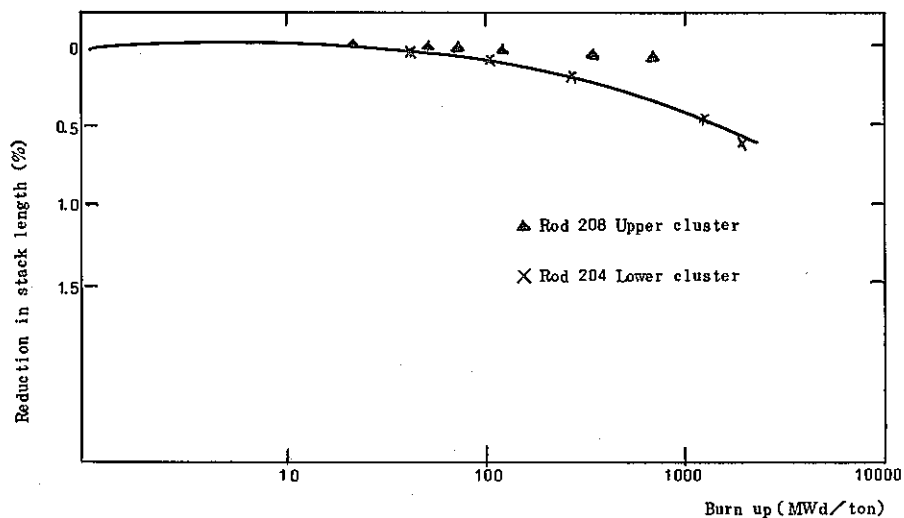
図7 燃焼度によるやきしまりの変化(ハルデン, lower cluster)



Reduction in stack vs burn-up for identical upper and lower cluster rods containing 87% T,D,unstable pellets,



Reduction in stack vs Burn-up for identical upper and lower cluster rods containing 92% T D Unstable pellets,



Reduction in stacklength vs burn up of identical lower and upper cluster rods of 87% T D stable pellets

図8 各種ペレットのやきしまり挙動(ハルデン)

## Ⅳ やきしまりが燃料照射挙動におよぼす影響

### 1 やきしまりの不均一性

炉外で焼結してペレットを製造するとき、形状変化は等方向で、均一に収縮し、高密度となる。ところが、照射中に起るやきしまりは、必ずしも均一でない。ウェスチンハウス社が、体積変化率とペレット長変化の関係をまとめたデータを図9に示す。<sup>1)</sup> このため、米国AECは、安全側の評価として、スタック長変化は、体積変化の $\frac{1}{2}$ 、半径方向の変化は、体積変化の $\frac{1}{3}$ と規定した。

### 2 やきしまりがおよぼす影響

やきしまりはペレットのスタック長の減少と半径の減少を伴う。これら2つの現象は、図10に示すようにつきつきと燃料挙動に悪影響をおよぼす。

これからわかるように、燃料挙動は、やきしまりの前後で大巾に変わる。このため、従来の設計基準では、原子炉の安全性を保証できない。そこで、やきしまりをあらかじめ評価した燃料設計が必要となる。さらに、やきしまりの起きないペレット製造方法の確立が必要となる。

### 3 ギャップの大きさと分布

やきしまりの結果、燃料柱の軸方向にギャップが生ずる。このギャップの測定方法、評価、中性子の乱れを下記に記述する。

#### 1) ギャップの大きさの測定

##### i) 炉内におけるスキヤンニング

最近の商用発電BWRは、すべてTraveling Incore Probe (TIP) 中性子検出系を装備しており、これによつて中性子束スキヤンを行いその異常からギャップの巾を測定する。しかし、この方法で検出できるギャップの精度は、～2インチ程度の大きさのものであり、あまり役立たない。<sup>7)</sup>

##### ii) 原子炉サイトでのガンマスキヤンニング

ゼネラルエレクトリック社が日本の敦賀炉の燃料で、本格的に行ったが、ギャップの存在は見出せなかった。本方法による検出限界は、約 $\frac{1}{4}$ インチで、後述する中性子ラジオグラフを併用すると有力な手段となる。<sup>7)</sup>

##### iii) 中性子ラジオグラフ

本方法は、ホットセル中で行い、検出限界は約10ミルであり、最も強力な方法である。BRP燃料棒中のギャップを本方法で測定し、得た結果を図11に示す。さらにBRPとHumboldtの燃料棒中で観測したギャップ巾のヒストグラフを図12に示す。<sup>7)</sup>

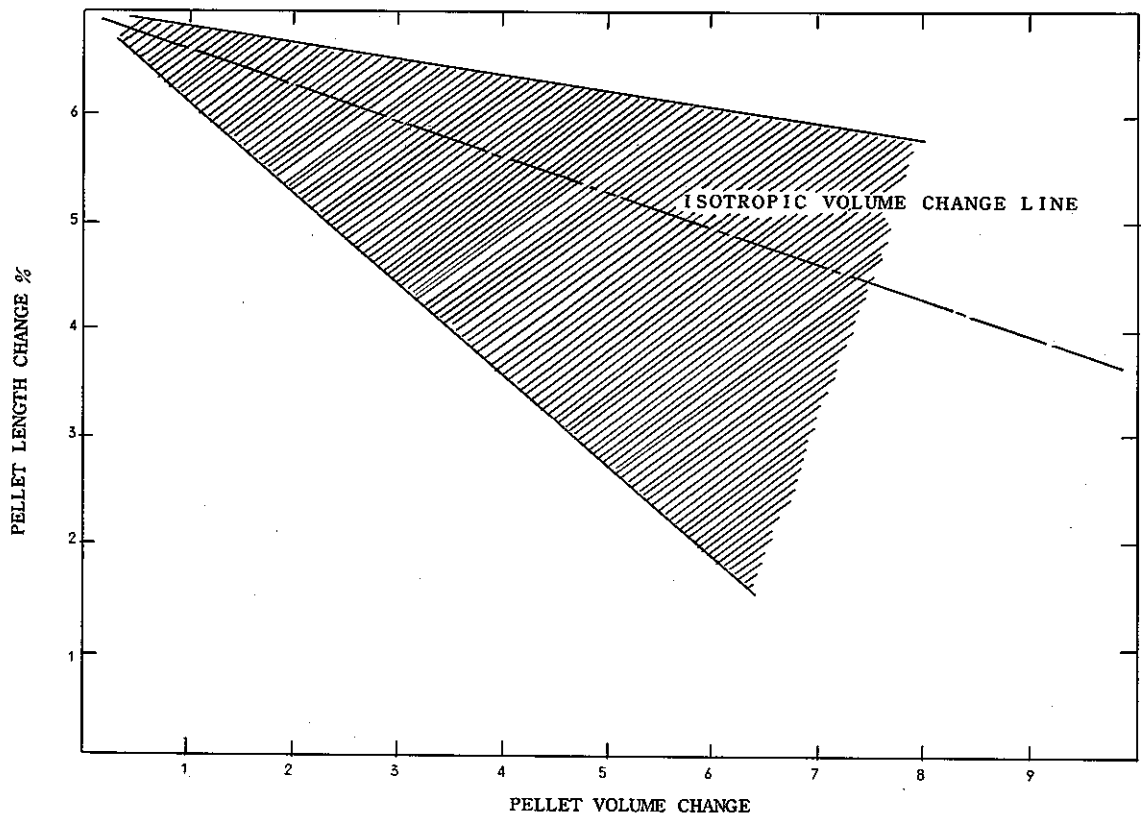


図9 やきしまりの方向性

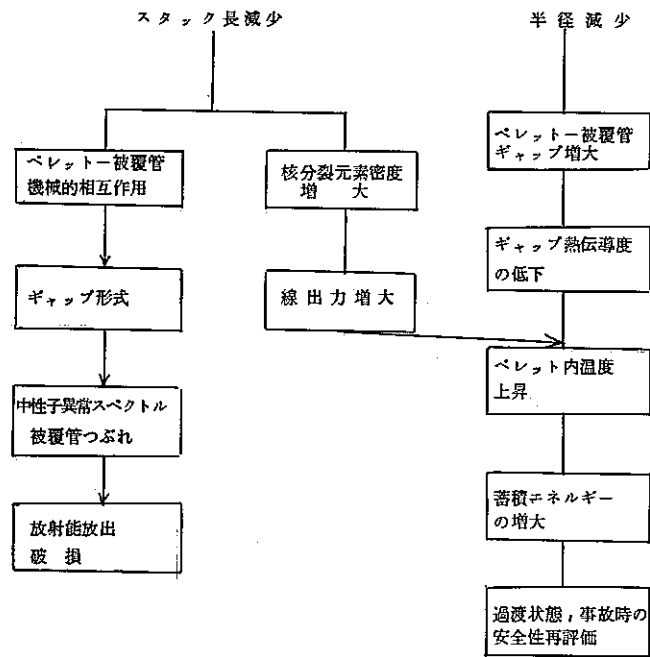


図10 やきしまりが燃料挙動におよぼす効果

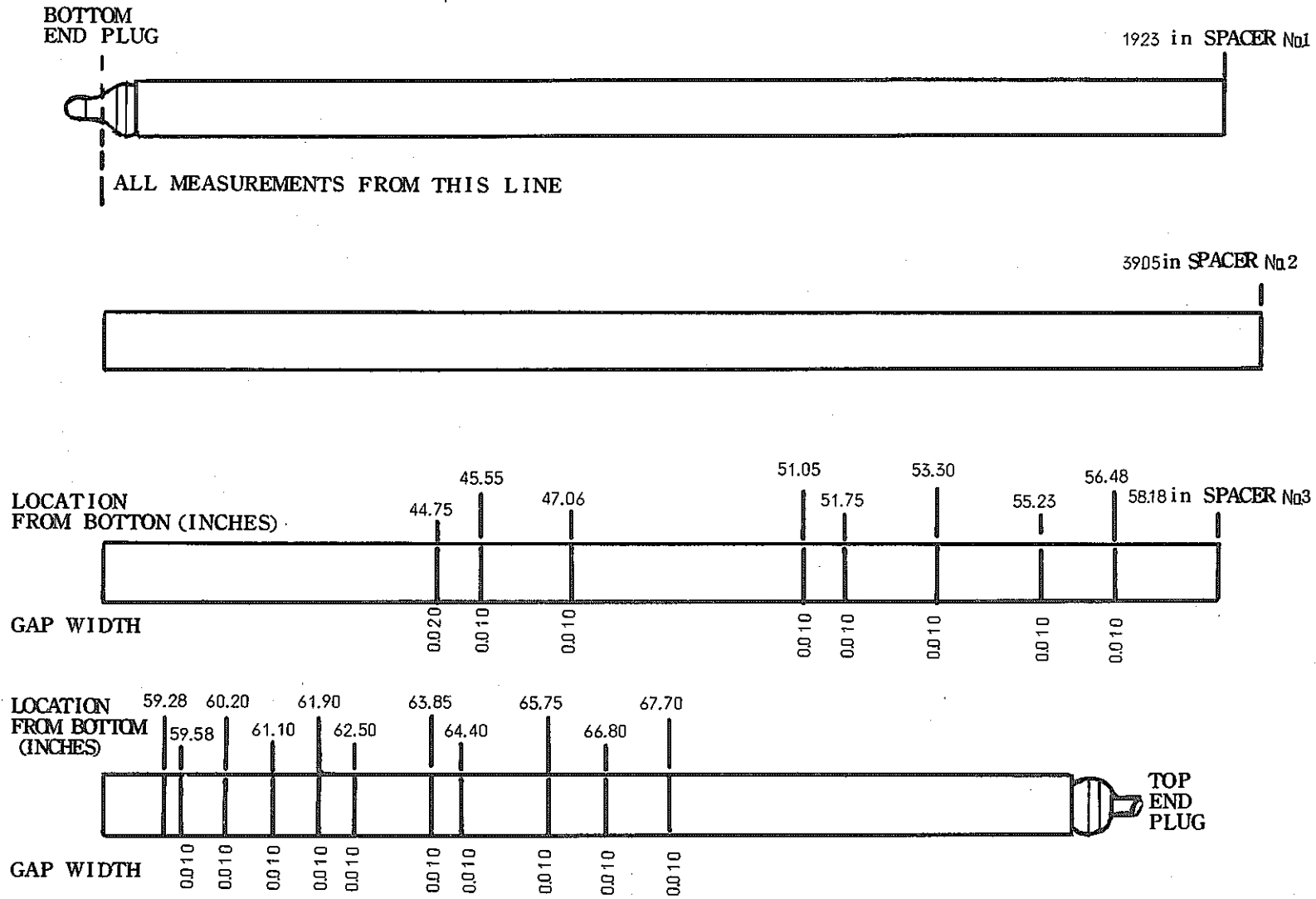


図 1 1 B R P 燃料棒中の軸方向ギャップ測定結果

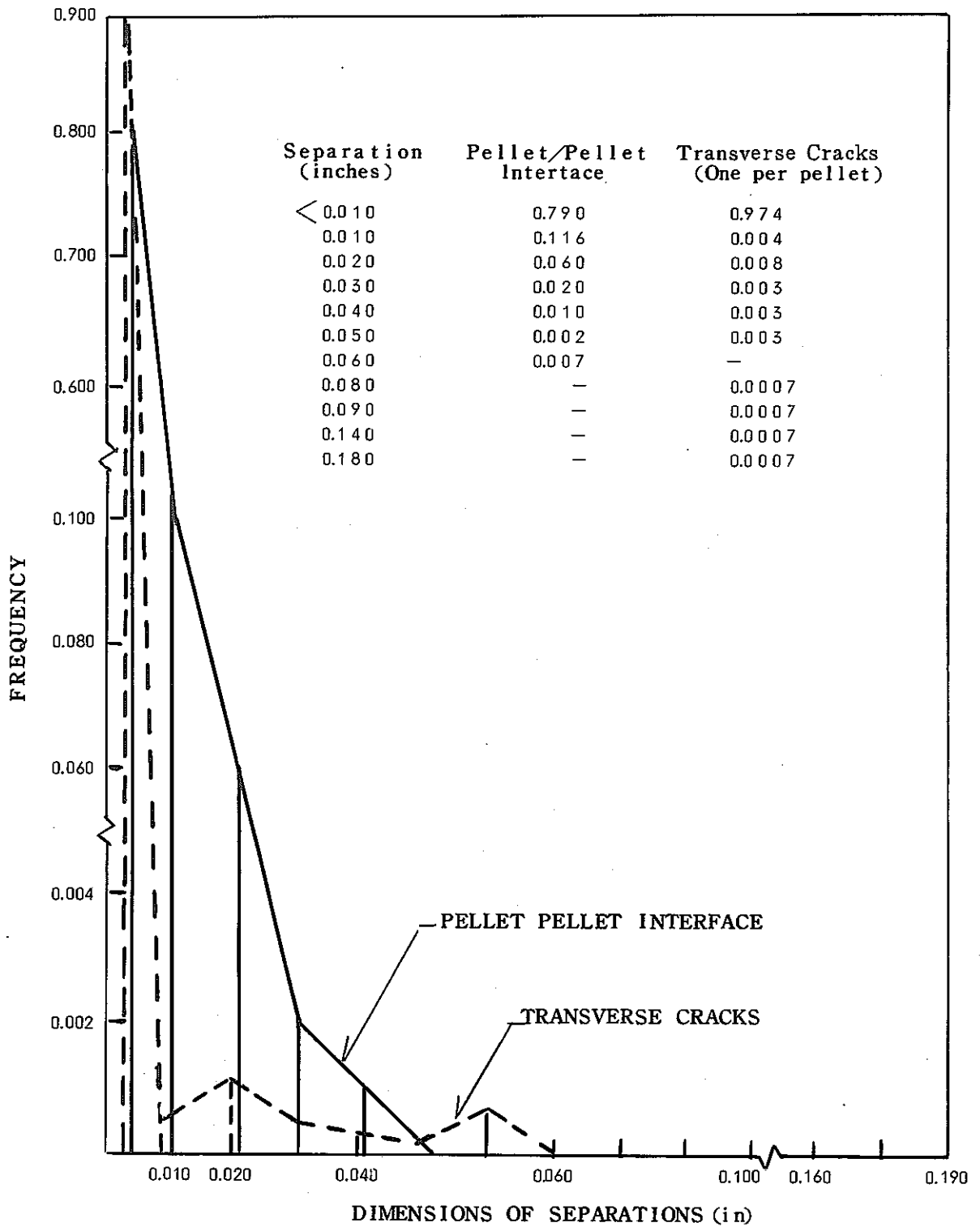


図 12 BRPと Humboldtの燃料中のギャップの分布

2) 軸方向ギャップの大きさと分布

米国AECは、燃料棒に生ずる最大のギャップ巾を最初次のように評価した。(2)

$$\Delta L = \left( \frac{0.965 - \rho_0 + 2\sigma}{2} + 0.004 \right) L \quad \dots\dots(1)$$

$\Delta L$  ; 最大ギャップ巾

$L$  ; 燃料柱の高さ

$\sigma$  ; ペレットの平均密度 (照射前)

0.004 ; 被覆管の照射成長および燃料-被覆管機械的、相互作用による補正係数

その後、最後の補正係数 0.004 は種々実験から再評価され最近の値としては、0.0025 の値が用いられている。(3)

ギャップの分布は、燃料柱の上端で最大のギャップ巾が存在し、下端では0であると仮定し、その中間では、前述した式で長さに比例して分布する。(5, 6)

4 サーマルスパイク

燃料柱にギャップができると、ギャップ近傍では、他の部分に比べ燃料による中性子吸収が少なくなるため、中性子束は局部的に増加する。このため、線出力は増大する。

この増加の程度の計算は、色々の会社で行なわれているが、代表的な例としてゼネラルエレクトリック社の解析を紹介する。(7)

ゼネラルエレクトリック社は、BWRでのギャップの実測結果(前述)から燃料中でできるギャップの大きさは、最大の場合で、ガンマスキヤンニングでの測定精度である0.25インチであると仮定した。この仮定をもとに、764体の集合体からなる炉心のピーキングをモンテカルロ法によって計算した。この結果、分布の95%点で線出力が18.5 kw/ftを起す確立は次式で与えられた。

$$P_{0.95} = P + Z_{0.95} \sqrt{\frac{(1-P)P}{N}} \quad \dots\dots(2)$$

$P$  ; 分布の50%点で、18.5 kw/ftを起す確立

$P_{0.95}$  ; 分布の95%点で "

$N$  ; 炉心の中で燃料棒数

$Z_{0.95}$  ; 標準正規分布において  $(-\infty, x)$  の累積分布が0.95になるような確率変数

この式は、 $P$  から0に近づくと

$$NP_{0.95} = NP + 1.645 \sqrt{NP} \quad \dots\dots(3)$$

燃料棒を一本に限定すると、試行錯誤法によって、95%の信頼度で18.5 kw/ftを超える



燃料棒を1本以内にするためには、トータルピーキングを1%減らせばよいと考えられた。

この1%の減少は、出力に直して0.1~0.2 kW/ftである。この値は燃料棒の軸方向の熱膨張1.6~1.7%に比べ小さく、したがって、その効果は熱膨張により打ち消されてしまう。

この他、バブコック社は、(1)式で計算できるギャップ巾3~4インチの大きさのものについて計算し、ギャップによるパワースパイク因子は、燃料棒下端で1.00から上端で1.126であることを示した。(5, 6)

## 5 線出力密度の増加

やきしまりが起るとスタック長が減少し、線出力が増加する。米国AECは、この変化量を保守的に評価し、当初次の式で表現した。(1)

$$\frac{\Delta L}{L} = \frac{0.965 - \rho_0 + 2\sigma}{2} \dots\dots\dots(4)$$

$\Delta L$ ; やきしまりによる変化量

$L$ ; スタック長(照射前)

$\rho_0$ ; ペレット密度( # )

$\sigma$ ; ペレット密度の標準偏差

その後、充分検討した結果、この式の $2\sigma$ は除去し、現在次の式で表現している。(2, 3)

$$\frac{\Delta L}{L} = \frac{0.965 - \rho_0}{2} \dots\dots\dots(5)$$

## 6 ペレット半径の変化

やきしまりの結果生ずるギャップ巾の増大は、燃料内の蓄積エネルギーを増大させる。このため、冷却材喪失時、過渡状態時の安全評価にはきわめて重要である。

ゼネラルエレクトリック社は、スタック長減少と同様に、ギャップ巾の変化を次の式で表現した。(7)

$$\frac{\Delta r}{r} = \frac{0.965 - \rho_0 + 2\sigma}{3} \dots\dots\dots(6)$$

$r$ ; 燃料ペレットの半径

$\Delta r$ ; # の変化量

米国AECは、この表現式に多くの注釈をつけ、採用してきた。(2)

しかし、最近になってゼネラルエレクトリック社を中心に精力的な研究が行なわれた結果、米国AECは、次の表現式を、最も信頼できるものとしている。(3)

$$\frac{\Delta r}{r} = \frac{1}{3} \frac{\Delta \rho}{\rho_0} \dots\dots\dots(7)$$

ここに  $\rho = \rho_0 \exp(-S\dot{F}t) + \frac{M}{A} \exp\left[-S\left(\frac{Go^3}{ADirr} + \dot{F}t\right)\right] \ln\left(1 + \frac{ADirr\dot{F}t}{Go^3}\right)$  (8)

(8)式については、次章で詳述する。

## V やきしまりの機構とスウェリング

### 1 やきしまりの機構とスウェリング

#### i) 米国 AEC の見解

米国 AEC の規制スタッフ達は、やきしまりについての最初の総合的な論文の中で、やきしまりの原子論的機構として次の 2 つの過程を指摘している。<sup>1)</sup>

##### (1) 再固溶に関連した機構 (Resolution-related mechanism)

この場合、空孔の表面近くを通り過ぎてゆく核分裂破片元素が、空孔内表面にある原子空孔を格子内へとじこめる助けをなす。この様にトラップされた原子空孔は、空孔 (pore) から離れて内部へ移動してゆき、この現象は空孔 (pore) へ向っての原子の質量移動をもたらす。最終的には空孔 (pore) が消滅する。

##### (2) 核分裂スパイクに関連した機構 (Fission spike-related mechanism)

この場合には、格子間原子と原子空孔が、核分裂プロセスによって生成される。格子間侵入原子は、(我々が今想定している温度でかなり大きい移動能力(易動度)を、持っている。)消滅源に向ってすみやかに移動する。そのあとの格子に過剰原子空孔を残してゆき、燃料内の原子の拡散速度を増大させる。

これらの 2 つのメカニズムはいつも、 $UO_2$  格子内のウラン原子の拡散を促進する効果がありその影響として 2 つのことがある。

(1) 常識では予想できない低い温度においてさえ、空孔の表面エネルギーの助けて焼結が進行する。

(2)  $1,000^\circ C$  以下の温度で、 $UO_2$  のクリープ速度は、核分裂速度に依存する。しかしこの場合は比較的溫度に敏感でない。クリープは、被覆管から伝えられる応力の影響を受け、又燃料ペレットカラムの重量から伝わる応力も関係する。

ここに記した 2 つのプロセスは、両方とも、結果として空孔の消滅をもたらす。スタッフ達は、空孔の表面エネルギーの助力を得て進行する焼結理論が正しいと考えた。この考えでは、反応の速度が、核分裂により生成される過剰な原子空孔により促進される。

#### ii) Marlowe のモデル<sup>8)</sup>

米国 AEC の説明は、定性的で、実際の燃料挙動解析には、使えない。その後、ゼネラルエレクトリック社の Marlowe は、焼結現象について、 $UO_2$  を中心にきわめて深い洞察を行い、やきしまりを定量的に表現した。

彼は、やきしまりの機構の説明に、焼結理論として有名な Coble の拡散律速焼結モデル<sup>9)</sup>、<sup>10)</sup>を採用した。そして、この中に用いられる拡散定数を、格子の熱振動によるもの、 $D_{th}$  と照射によるもの、 $D_{irr}$  との和と考え、次のように表現した。

$$D = D_{th} + D_{irr} \dots\dots\dots(9)$$

ここで彼は、 $D_{irr}$  について、ウラン合金の照射実験<sup>11)</sup>、 $UO_2$ の炉内クリープ実験の結果<sup>12)</sup>を評価し、次の式で表現した。

$$D_{irr} = D_{irr} \dot{F} \dots\dots\dots(10)$$

ここに、 $\dot{F}$ は核分裂率 (fission rate)、 $D_{irr}$ は定数で、グリーンペレットの低温照射によるやきしまり実験から

$$D_{irr} = 1.27 \times 10^{-29} \text{ (cm}^2/\text{sec) (cm}^2\text{-sec/fission)}$$

である。

やきしまりの問題となる温度領域では図13に示すように  $D_{irr} \gg D_{th}$  であることを考慮すると、Cobleの焼結理論により、やきしまりによる密度変化は次のようになる。

$$\rho - \rho_0 = \frac{M}{A} \ln \left( 1 + \frac{AD_{irr} \dot{F} t}{G_0^3} \right) \dots\dots\dots(11)$$

ここに

$G_0$  : 最初の粒径

$A$  : 粒生長定数  $A = (G^3 - G_0^3) / DT \text{ (cm)}$

$M$  : 焼結速度定数  $M = \Delta \rho G / D^2 \Delta t \text{ (\% - cm)}$

である。

$A$ は、Lyon等の $UO_2$ 粒生長測定結果<sup>13)</sup> Marin等の拡散定数測定結果から<sup>14)</sup> 2.14 cmとした。 $M$ は、炉外での $UO_2$ の焼結実験から 4.44 % cm と決めた。しかし、この値は、対象となる試料により異なる。

## 2 スウェリングとやきしまり

燃料を照射すると、まずやきしまりによって燃料の密度は増加するが、照射が進むにしたがってスウェリングが生じて、やきしまりと反対に燃料の密度の低下させるので、燃料挙動を考えるとときには、この2つの現象を同時に考えなければならない。わかりやすくするために、やきしまりとスウェリングの起る燃焼度の範囲を、図14に示す。

Marloweは、これらの2つの現象による密度の変化率は、各々の現象による変化率の和であると考え、次のように表現した。

$$\frac{d\rho}{dt} = \left( \frac{d\rho}{dt} \right)_{den} + \left( \frac{d\rho}{dt} \right)_{swel} \dots\dots\dots(12)$$

第1項の  $\left( \frac{d\rho}{dt} \right)_{den}$  は、(11)式を微分した式を用いる。

第2項のスウェリングについては、スウェリングによる体積膨張を単純に照射量に比例すると

し、次の式で表現した。

$$V = V_0 (1 + S \dot{F} t) \dots\dots\dots(13)$$

ここに

V : スウェリング後の体積

V<sub>0</sub> : 照射前の体積

S : スウェリングによる体積変化率 (0.2% ~ 0.7% / 10<sup>24</sup> fission)

(13)式を微分して

$$\frac{d\rho}{dt}_{swel} = -\rho S \dot{F} \dots\dots\dots(14)$$

この結果、やきしまりとスウェリングを考慮した場合の任意の時間における燃料の密度は、(13) (14)式を(12)式に代入し、積分して次のようになる。

$$\rho = \rho_0 \exp(-S \dot{F} t) + \frac{M}{A} \exp\left[-S \left(\frac{G_0}{AD_{irr}} + \dot{F} t\right)\right] \ln\left(1 + \frac{AD_{irr} \dot{F} t}{G_0^3}\right) \dots\dots(15)$$

これらの結果を理解し易くするために、燃焼度とともにどのように密度が変化するかを、最初の粒径をパラメーターとして図15、16図に示す。さらに、最大の密度変化は、粒径によりどのように変わるかを図17に示す。さらに、ハルデンの照射実験との比較を図18、19に示す。(15)

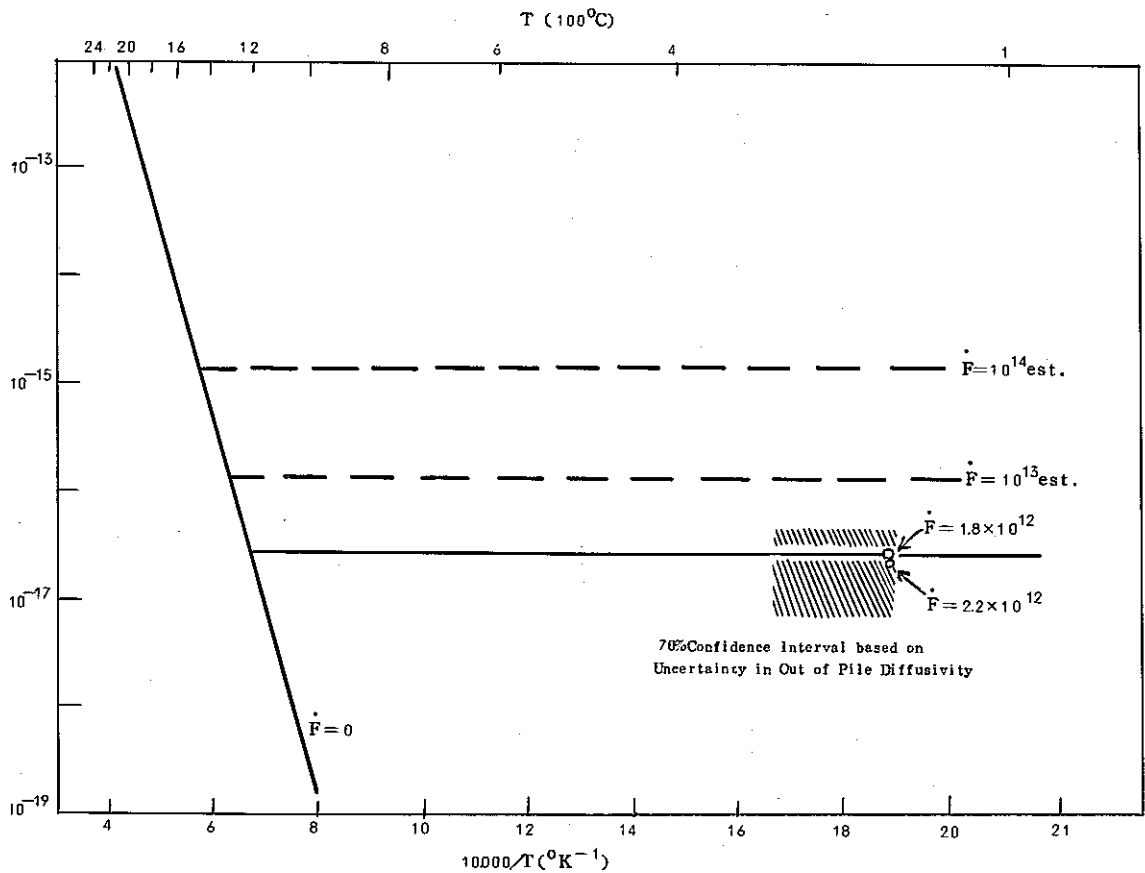


図 13 熱的な膨張定数と照射による膨張定数の比較

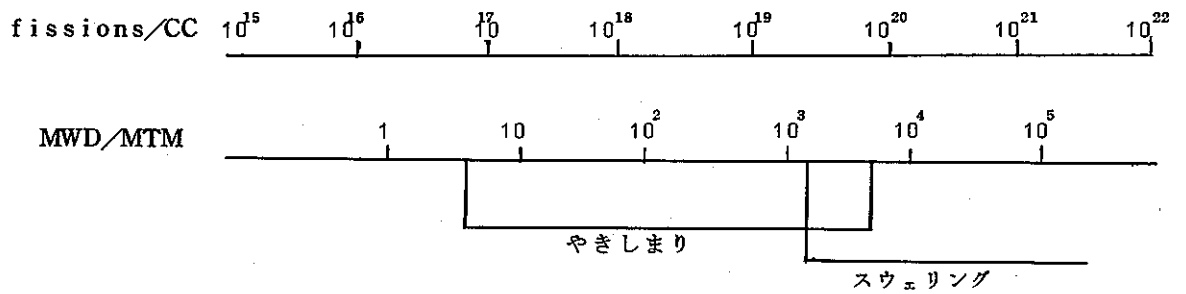


図 14 やきしまりとスウェリングが起る照射領域

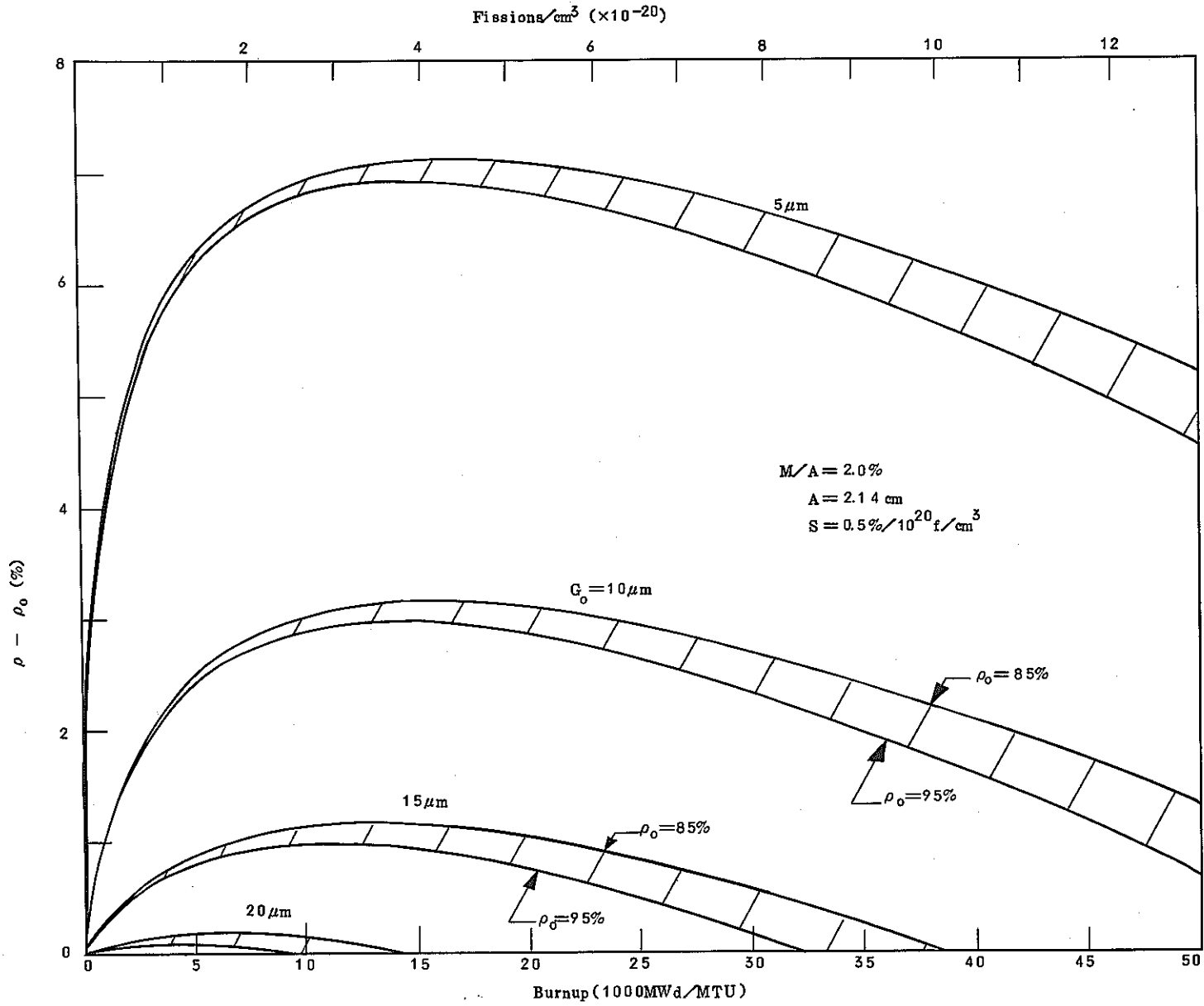


図 15 異なる粒径をもつ燃料における密度変化 (計算値) (M/A = 2.0% の場合)

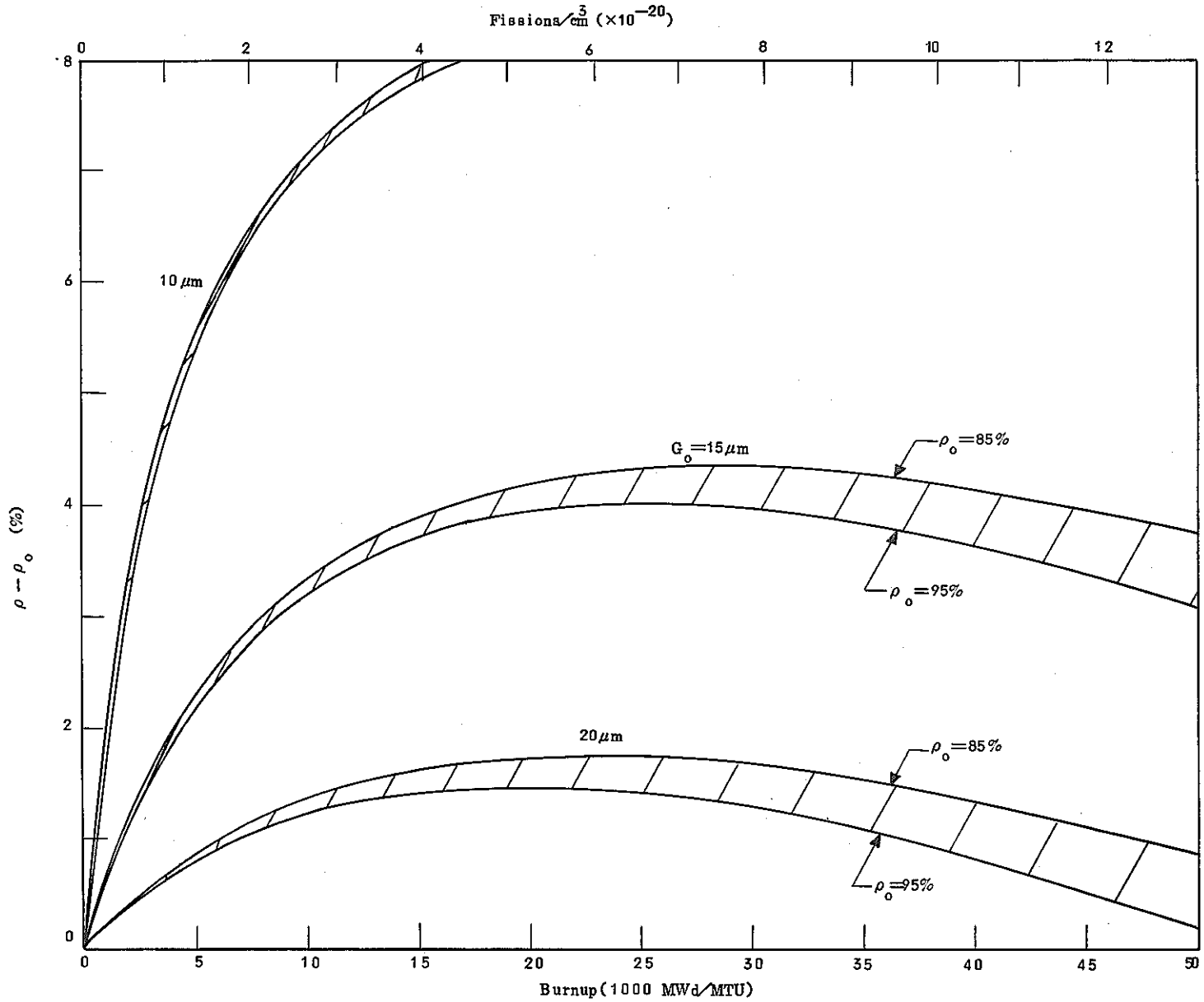


図 1 6 異なる粒径をもつ燃料における密度変化 (計算値) ( $M/A = 4.0\%$  の場合)

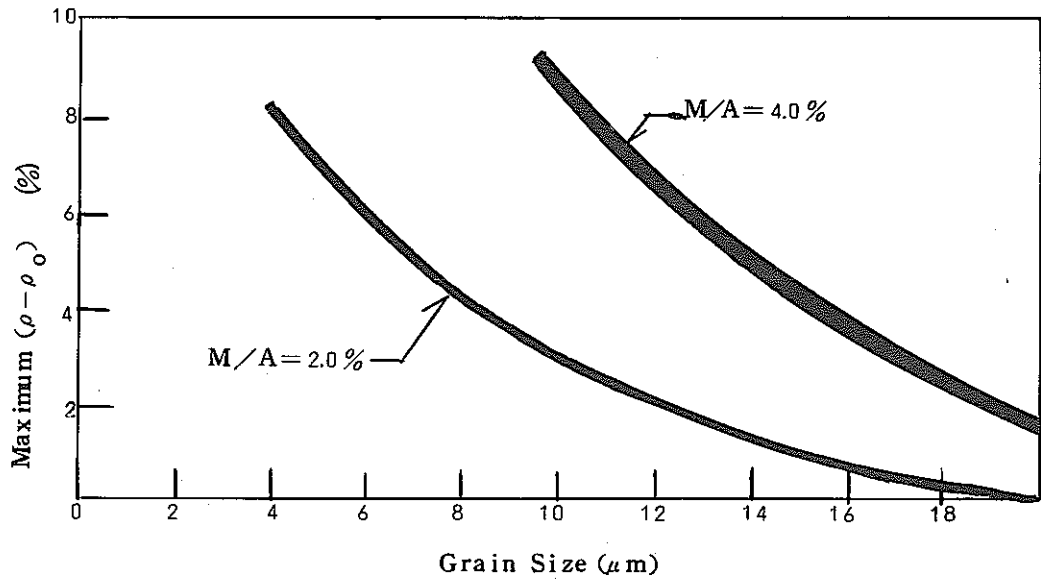


図 17 最大到達密度の粒径による変化



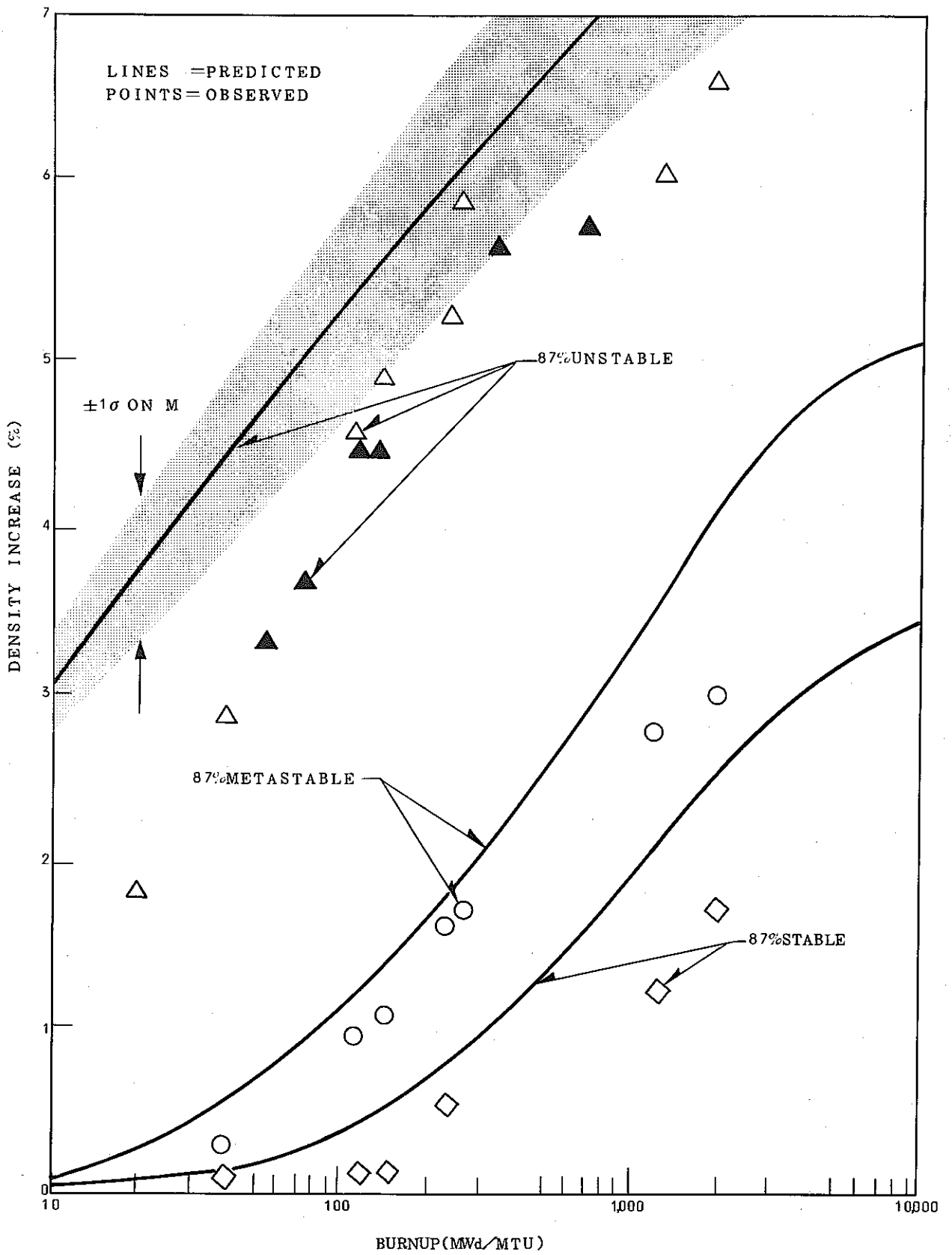


図 18 やきしまりの実測値と計算値の比較

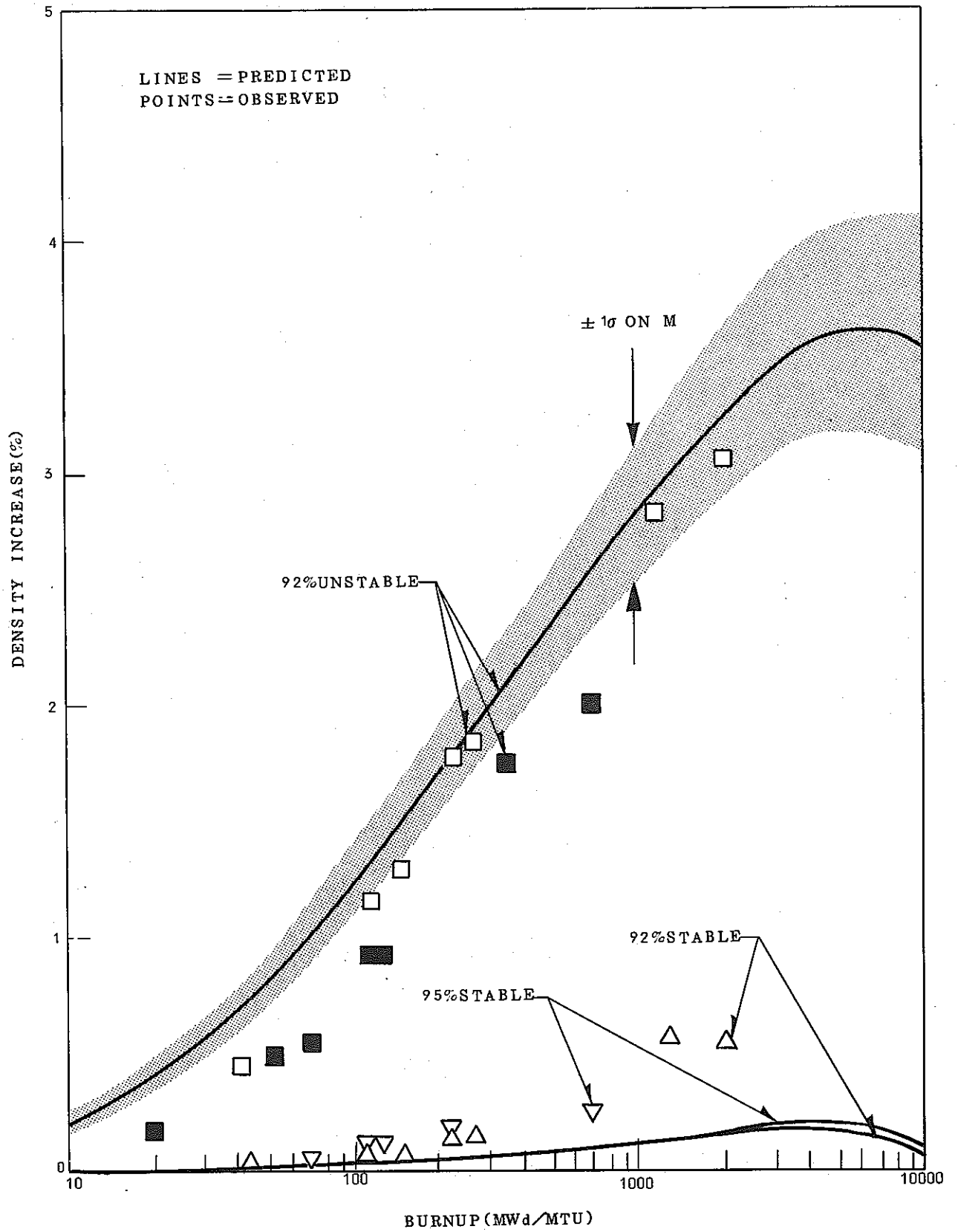


図19 やきしまりの実測値と計算値の比較

## VI 高速炉における実験例

これまで、やきしまり現象は、軽水炉燃料を中心に圧倒的に多くの研究が進められてきたが、高速炉燃料でも当然生ずるものと考えられる。しかし、高速炉におけるやきしまりの照射実験は、EBR-IIで行った2つの報告があるのみである。以下これらの結果について報告する。

### 1 アルゴンヌ研究所 (ANL) での研究<sup>16)</sup>

Lambert と Neimark は、密度 85.90, 95% (スミア-密度 81, 87, 91%) の高速炉燃料 (PuO<sub>2</sub>含有率、25%) を、厚さ約 0.4 mm 直径 6.35 mmφ の 316 ステンレス被覆管に入れて、EBR-II で 11~12 kW/ft の線出力で 24 時間照射した。燃料形態としてはペレットタイプ、ゾルーゲル振動充填で、さらに、ペレットタイプは、1 回の加圧成型で製造したものと、2 回の加圧成型で製造したものに区分した。

照射後、燃料ピンのスタック長を、ニュートロンラジオグラフで測定したところ、照射前に比べ 85% 燃料では、2.0~2.5% の減少が認められた。しかし、90%、95% 燃料では、照射前後のスタック長変化は、観察できなかつた。観測結果の詳細を表 5 に示す。さらに、一部のニュートロンラジオグラフィを図 20 に示す。

これらのペレットを製造した条件が明らかでないので、断言できないが、これだけのデータのみから判断すると、密度 85% のやきしまりによる到達密度は約 90% であるので、軽水炉燃料評価に用いた 96.5% より小さいといえる。

### 2 ハンフォード (Hanford) の研究<sup>17)</sup>

Carlson は、米国の FFTF 燃料のやきしまりを究明するため、同じ仕様をもつ混合酸化物ペレット入り燃料ピンを、EBR-II で照射した。ペレットの密度は、約 90% で、線出力は 5.1, 9.6, 10.6 kW/ft、燃焼度は 1,850, 9,100, 27,500 MWD/MTM であった。これらの照射条件を表 6 に示す。

彼の実験方法は、これまで述べてきたスタック長変化測定の方法をとらず、やきしまりを照射による燃料の結晶組織変化 (特に空孔径の分布、変化) からとらえ、これからやきしまりの機構を追求している。彼の測定した照射前と照射後の空孔径分布の代表的な結果を図 21 に示す。彼は、これらの結果を整理し、次の結論を得た。

- (1) 照射中の空孔径分布は、温度 140°C 以下、燃焼度 27,000 MWD/MTM 以下で核分裂ガス気泡の発生の無視できる領域では、空孔 (ガスのつまった) の再溶解と捕獲による機構で表現できる。
- (2) 照射前後における空孔径変化、 $\Delta D$  は次の式で表現できる。

$$\Delta D = - (4.37 \pm 0.49) \times 10^{-5} I + (9.45 \pm 0.62) \times 10^{-13} I^2 T \dots\dots\dots (10)$$

I : 燃焼度 (  $I \leq 30,000 \text{ MWd/MTM}$  )

T : 絶対温度 (  $1000^\circ\text{K} < T < 1,400^\circ\text{K}$  )

(3) 照射による空孔径変化は、照射前の空孔の特徴、すなわち製造条件に依存する。

参考のため、(10)式の計算値と実測値の比較を表7に、空孔径変化に伴う空孔体積の減少を図22に示す。

## VII 実際の燃料の評価 (例 もんじゅ燃料)

もんじゅ燃料として用いられる混合酸化物ペレットの密度は85%である。これは、アルゴンヌ研究所の照射実験から考えてもやきしまりが生ずると考えられる。しかし、そのやきしまりの大きさがどの程度になるかは、アルゴンヌの照射実験での試料の製造方法、もんじゅ燃料の製造方法が明白でないので、決め難い。

したがって、燃料設計に用いるためこの大きさを決めるには、できるだけもんじゅ燃料製造に近い製造条件で、試料の製造し、高速炉による照射実験および炉外高温長時間加熱により、評価しなければならない。

表5 アンゴヌ研究所の照射実験の詳細

Element Number	Fuel Type	Fuel Density (%TD)	Smearred Density (%TD)	Gap Size (mils)	Linear Power (kW/ft)	Percent <sup>a</sup> Length Change	Void <sup>b</sup> Diameter (mils)	Observations
41SAP3	Pellet	8.47	8.15	4	114	-2.45	~15	Pellet interfaces regular and well defined on neutron radiographs. Very obvious shrinkage of fuel columns.
422AP3	Pellet	8.45	8.14	4	111	-2.41	15-20	
423AA3	Pellet	8.44	8.13	4	108	-2.68	~10	
426AP1	Pellet	8.44	8.13	4	114	-1.63 <sup>c</sup>	10-15	
518AP3	Pellet	8.47	8.15	4	145	-1.95	35-40	
522AP5	Pellet	8.45	8.14	4	137	-2.11	25-30	
526AP1	Pellet	8.43	8.12	4	147	-2.15	35-40	
419BA3	Pellet	9.09	8.76	4	120	+0.10	None	Less well defined pellet interfaces than in the low density fuel columns.
424CP3	Pellet	9.06	8.73	4	115	+0.10	None	
425CA5	Pellet	9.04	8.73	4	114	+0.13	None	
427BM1	Pellet	9.06	8.72	4	115	+0.17	None	
428BP1	Pellet	8.95	8.75	4	116	+0.10	None	
429BO1	Pellet	8.98	8.73	4	117	+0.06	None	
519BA5	Pellet	9.05	8.72	4	155	-0.48	~20	
524BP5	Pellet	9.06	8.73	4	157	+0.03	15-20	
527BM1	Pellet	9.09	8.75	4	154	-0.11	~15	
528BP1	Pellet	8.96	8.64	4	151	-0.08	~20	
529BO1	Pellet	8.98	8.66	4	154	+0.17	10-15	
432BP1	Pellet	8.9.98	8.19	10	113	+0.17	5-10	Small irregular void.
523BP1	Pellet	8.9.8	8.19	10	145	+0.40	~40	Wavy irregular void with bridged pellet gaps.
19-12R	Slugged <sup>d</sup>	9.24	8.90	4	120	-0.20	~5	Void in center pellets only. Pellet dishing apparent.
19-11R	Slugged	9.24	8.57	8	117	-0.10	10-15	
19-19R	Slugged	9.24	8.90	4	154	-0.11	15-20	Slightly irregular void.
19-15R	Slugged	9.24	8.57	8	145	N/A	~30	
414CV5	Sol-Gel S	--	8.07	--	110	0	~15	Large void in top 0.5 in.
530CV1	Sol-Gel	--	8.46	--	148	-0.42	25-30	
420DP5	Pellet	9.50	9.15	4	121	+0.21	None	Indistinct interfaces between pellets.
421DA5	Pellet	9.49	9.14	4	120	+0.03	None	
431DP1	Pellet	9.50	9.14	4	123	+0.03	None	
520DP5	Pellet	9.50	9.15	4	156	+0.12	<10	Indistinct pellet interfaces; voids in center pellets only.
521DA5	Pellet	9.49	9.13	4	157	-0.02	<10	
531DP1	Pellet	9.49	9.13	4	156	+0.05	<10	

<sup>a</sup> Probable accuracy  $\pm 0.10\% \Delta/L$ <sup>b</sup> Approximate values only<sup>c</sup> Shrinkage underestimated because of cracked fuel (element dropped during handling)<sup>d</sup> Two-stage cold-pressing operation: first-stage high-pressure compaction and granulation, second-stage low-pressure compaction.

表 6. EBR-II での照射条件  
Irradiation Conditions

Fuel								Operating Conditions		
Designation	Diam (in)	Length (in)	Fuel-Cladding Diametral Gap (mil)	Pellet Density % TD	PuO <sub>2</sub> (%)	<sup>235</sup> U inU (%)	Cladding	Section Location (in)	Local Burnup (MWd/MTM)	Local Power (kW/it)
PNL 1-19-C-4	0211	135	6	904	25	93	Type-304 SS 0.250, in. o. d. ×0.016 in thick	5.1	9 100	9.6
PNL3-27-F	0212	135	6	888	25	071	Type-304 SS 0.250, in. o. d. ×0.016 in, thick	7.9	27 00	5.1
PNL 11-22D	0104	135	6	909	25	65	Type-316 SS-20 0.230 in.o.d ×0.015 in thick	1.0	1 50	10.6

<sup>a</sup>Distance from bottom of fuel column.

<sup>b</sup>Calculated for plane of section from Nd burnup analysis near midplane of fuel column.

表 7. 照射前後における粒径変化の実測値および計算値の比較

$$\Delta D = - (4.37 \pm 0.49) \times 10^{-5} I + (9.45 \pm 0.62) \times 10^{-13} I^2 T$$

Irradiation Test	Local Burnup (MWd/MTM)	Fuel Temperature (°C)	Diameter Decrease (μm) <sup>2</sup>		
			Predicted	Measured by Regression Calculation	Measured from Frequency Change
PNL 11b	1 850	1160	0.077 ± 0.03	0.083	0.18 ± 0.26
	1 850	1430	0.076 ± 0.03	0.10	0.26 ± 0.52
	1 850	1640	c	0.007	0 ± 0.45
PNL 1	9 100	1150	0.31 ± 0.10	0.39	0.33 ± 0.20
	9 100	1470	0.28 ± 0.09	0.25	0.30 ± 0.24
	9 100	1800	c	0.12	0.22 ± 0.26
PNL 3	27 200	1050	0.45 ± 0.10	0.39	0.45 ± 0.20
	27 200	1210	0.34 ± 0.10	0.37	0.36 ± 0.16
	27 200	1420	0.19 ± 0.13	0.21	0.16 ± 0.16

<sup>a</sup>Uncertainties are shown at 95% confidence levels.

<sup>b</sup>Pore diameter changes for PNL 11 burnup are too small to be statistically significant at 95% confidence level. Measured values were not used in calculating the shrinkage function but are given to show the magnitude of the measured changes.

<sup>c</sup>Measurements at edge of equiaxed grain region.

Element 418AP3 @11.4KW/ft

Element 522AP5 @13.7KW/ft

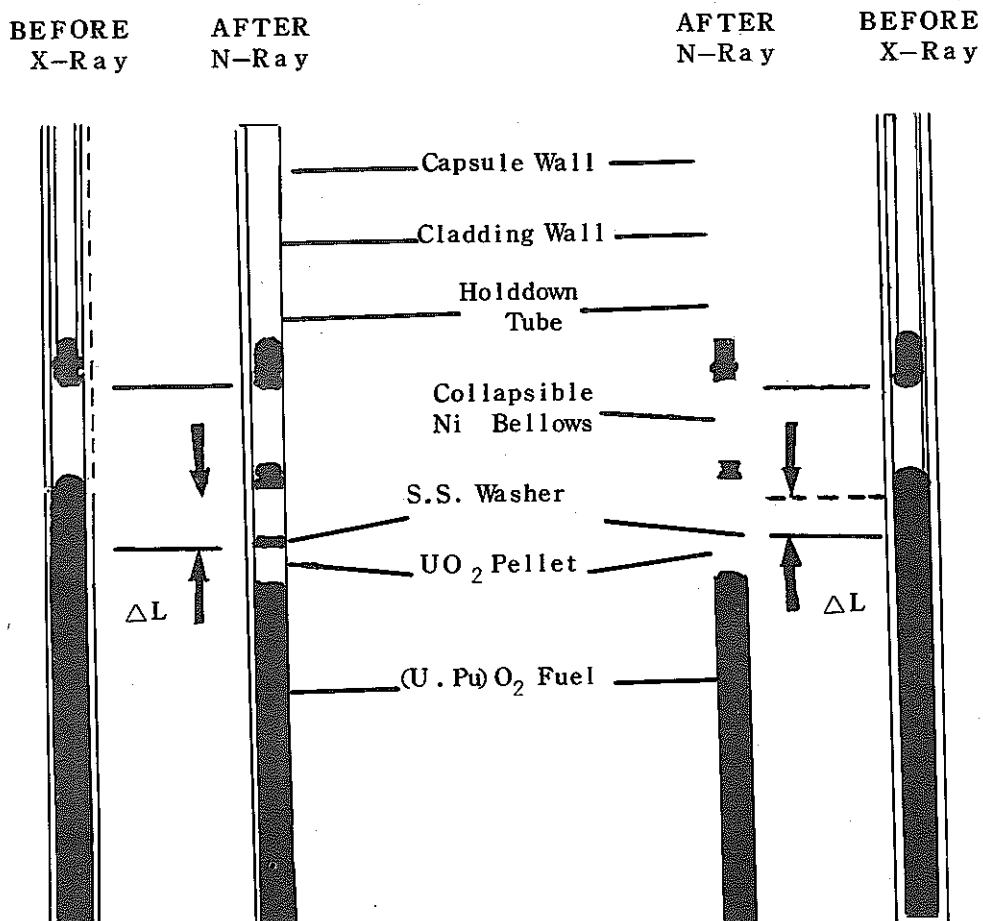


図 20 高速炉におけるやきしまりの観測例 (EBR-II)

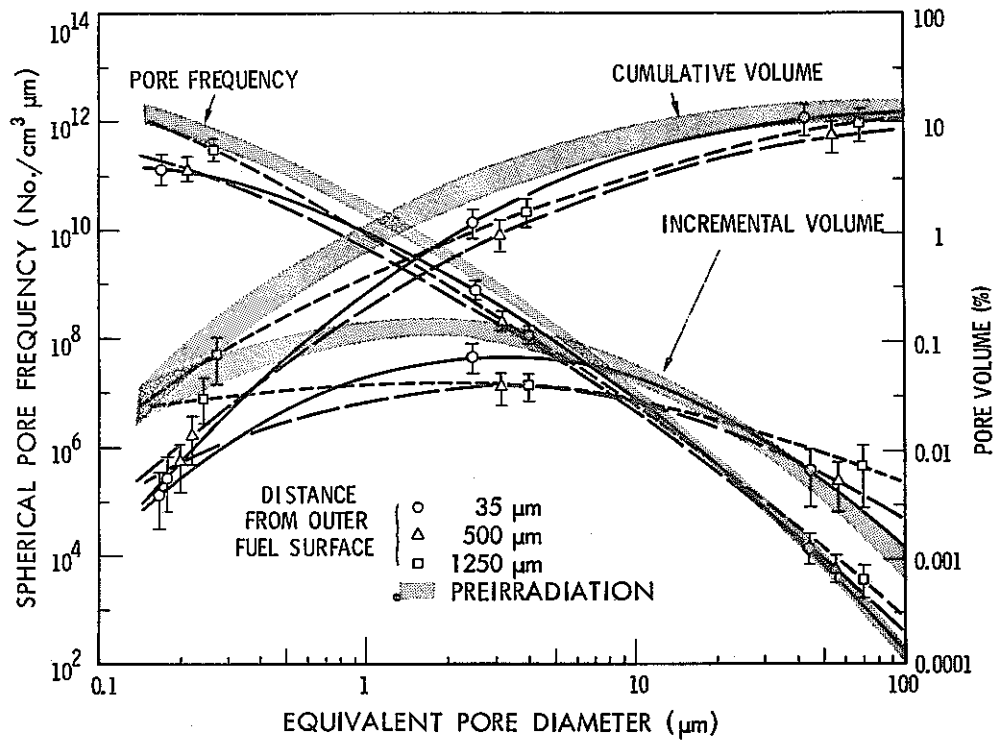


図 2 1 照射前後の空孔径分布の変化 ( 燃焼率 27,200 MWD / MTM, 出力 5.1 Kw / f t )

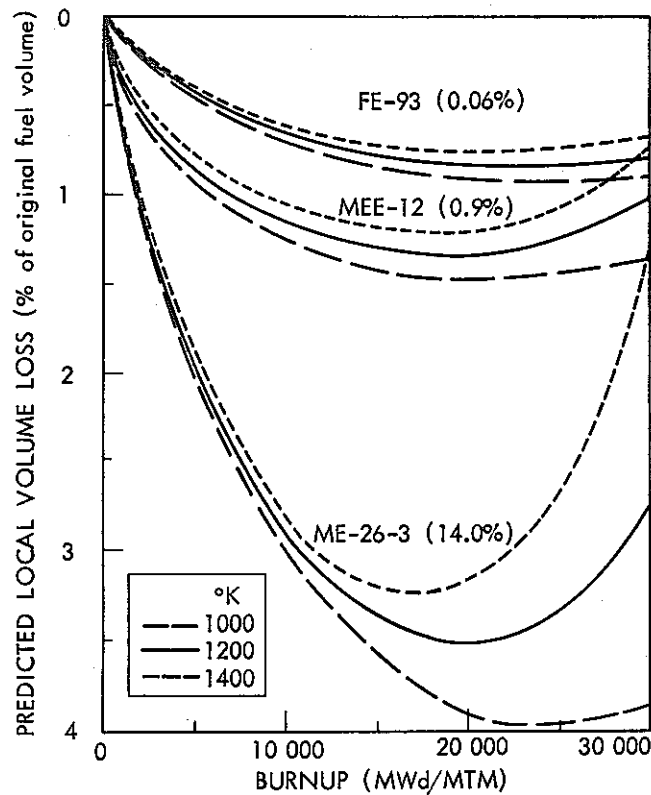


図 2 2 空孔径変化に伴う密度変化 ( カッコ内の数字は、2  $\mu\text{m}$  以下の空孔がしめる割合 )



### VIII やきしまりの炉外評価

照射実験でやきしまりの程度を求めるのが最も理想的であるが、照射実験は、多大の費用と時間を要するので、これに代るものとして、炉外で高温長時間加熱により、一つの評価をすることができる。

焼結の原子論的モデルによれば、炉内外の密度変化は、拡散定数と時間の積との間に次の関係が成立する。8)

$$\frac{D_{irr} t_{irr}}{(\Delta L/L_o)_{irr}} = \frac{Dt}{(\Delta L/L_o)} \dots\dots\dots (17)$$

$(\frac{\Delta L}{L})_{irr}$  : 照射中でのスタック減少率

$(\frac{\Delta L}{L})$  : 炉外で #

$D_{irr}, D$  : 炉内、炉外の拡散定数

$t_{irr}$  : 照射時間

$t$  : 炉外焼結時間

今  $(\frac{\Delta L}{L})_{irr} = (\frac{\Delta L}{L_o})$  の場合を考えているので、(17)式で  $t$  は、

$$t = \frac{D_{irr} t_{irr}}{D} = \frac{D_{irr} F t_{irr}}{D} \dots\dots\dots (18)$$

ここで  $D = D_o \exp(-\frac{Q}{RT}) = 2.32 \times 10^{-5} \exp(-\frac{82,000}{RT})$

$$D_{irr} = 1.27 \times 10^{-29} \text{ cm}^2/\text{fission}$$

を用いると、20,000 MWD/MTM, 温度 17,000°C で  $t = 100 \text{ hr}$  となる。

米国 AEC は、この理論をさらに発展させ、炉内のやきしまりがほぼ 4,000 ~ 5,000 MWD/MTM で終ること、およびハルデンの照射実験と炉外実験の比較結果から、炉内のやきしまりの程度は、炉外で 1700°C, 24 時間焼結したとき起る密度変化以下であることを示した。彼等の使用したハルデンの照射結果と炉外加熱テスト (1700°C, 24 時間) の比較を、図 23 に示す。

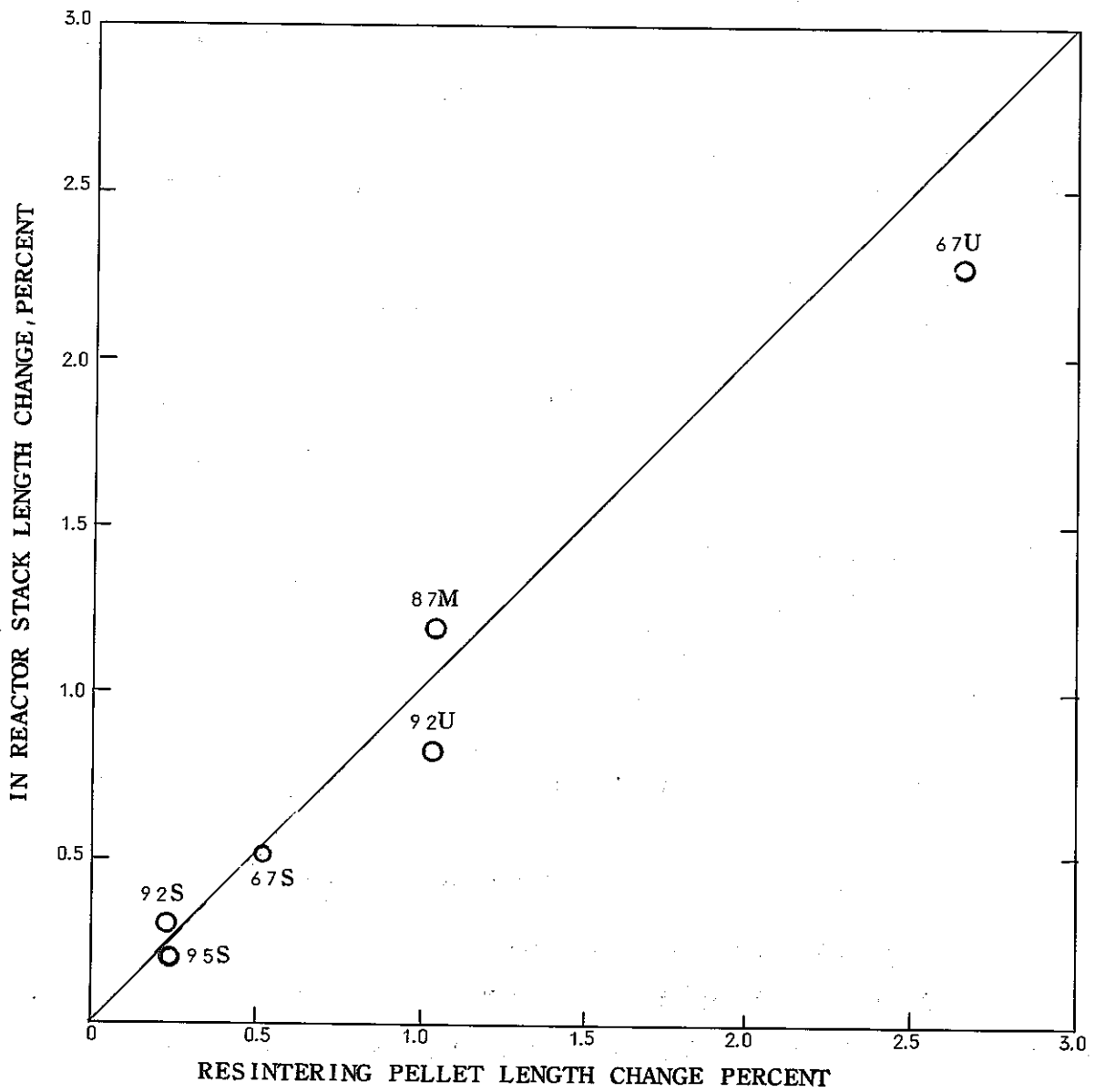


図 23 炉内やきしまりと炉外のやきしまり ( 1700℃, 24時間 ) の比較

## IX 結 論

軽水炉燃料のやきしまり現象について調査した結果、つぎの結論を得た。

1. 燃料のやきまりの結果、燃料柱の軸方向にできる最大のギャップ大きさ、 $\Delta L$ は次式で表現できる。

$$\Delta L = \left( \frac{0.965 - \rho_0}{2} - 0.0025 \right) L \quad \dots\dots\dots(19)$$

L : 燃料柱の長さ

$\rho_0$  : ベレットの照射前密度

2. 燃料のやきまりの結果生ずる線出力密度の変化は、スタック長変化、 $\Delta L$ が次式で与えられる大きさだけ縮んだものとして計算できる。

$$\Delta L = \left( \frac{0.965 - \rho_0}{2} \right) \quad \dots\dots\dots(20)$$

3. 燃料のやきまりの結果生ずる半径方向の減少は、次式で与えられる。さらにこの結果より被覆管-燃料のギャップが決まり、ギャップコンダクタンスに用いられる。

$$\frac{\Delta r}{r} = \frac{1}{3} \frac{\rho_0}{\rho_0} \quad \dots\dots\dots(21)$$

$$\rho = \rho_0 \exp(-S\dot{F}t) + \frac{M}{A} \exp \left[ -S \left( \frac{G_0^3}{A D_{irr}} + \dot{F}t \right) \right] \ln \left( 1 + \frac{A D_{irr} \dot{F}t}{G_0} \right) \quad (21)$$

ここに

$\rho_0$  : 初期密度

S : スウェリングによる体積膨張率 (0.2 ~ 0.7 % /  $10^{20}$  fissions)

$\dot{F}$  : 核分裂率 (fissions/cm<sup>3</sup>/sec)

t : 照射時間 (sec)

$G_0$  : 初期ベレットの粒径

M : 密度化定数 (4.44 % cm)

A : 粒成長速度 ( $7.7 \times 10^{15}$  m<sup>3</sup>/h  $\cdot \frac{\text{sec}}{\text{cm}^2} = 2.14$  cm)

$D_{irr}$ :  $D_{irr} = D_{irr} \dot{F}$  の式の比例定数 ( $1.27 \times 10^{-29}$  cm<sup>6</sup>/fission)

4. 炉内のやきしまりは、4,000 ~ 10,000 MWD/MTMで起り、このやきしまりの大きさは、1700°C、24時間の炉外加熱時における密度変化以下である。
5. 照射中の燃料のやきしまりの大きさは、用いた燃料の製造条件(金相組織)に大きく依存する。このため、やきしまりをできるだけ少くする燃料の製造技術の確立が必要である。

## 参 考 文 献 /

1. USAEC regulatory Staff, Technical Report on Densification of Light Water Reactor Fuels Nov.14, (1972)
2. USAEC regulatory staff, "ibid, Aug.23, (1973)
3. USAEC regulatory Staff, "ibid, Dec.14, (1973)
4. A.Hanevik and p.Arnesen, HIR-066(1973)
5. R.A.Turner, BAW-10055(1973)
6. R.A.Turner, BAW-1388 (1973)
7. D.C.Ditmore and R.B.Elkins, NEDM-10735
8. M.O.Marlowe, NEDO-12440(1973), TRANS, ANS, 17(1973)166
9. R.L.Coble, J.Appl.phys., 32(1961)787
10. R.L.Coble, J.Appl.phys., 32(1961)793
11. M.L.Bleiberg, J.Nucl.Mat., 2(1959)182
12. A.A.Solomon, J.Ame.Ceram.Soc., 56(1973)164
13. M.F.Lyons, D.H.Coplin and B.Weiclenbaum, GEAP-4111(1963)
14. J.F.Marin and P.Contamin, J.Nucl.Mat., 30(1969)16
15. General Electric Staff, NEDO-20181
16. J.D.B.Lambert and L.A.Neimark, TRANS, ANS., 17(1973)170
17. M.C.J.Carlson, Nucl.Tech., 22(1974)335
18. T.J.Heal, J.E.Little child and R.H.Watson, A paper presented on BNES Conference held at Oct, 15~19(1973)NO. 52
19. H.M.Ferrari, E.Roberts and J.Scott, "ibid, No.54
20. M.A.Rigdon, T.P.papazoglou, C.J.Baroch, and M.H.Montgomery., "ibid, NO. 59
21. D.Bruchlacher and W.Dienst, "ibid, NO60
22. R.B.Holden, N.Fuhrman and L.Raven, TRANS, ANS., 17(1973)169
23. A.Calza, Bim, G.Cosoli, G.Felacchione, M.Lanchi, A.Nobili, U.Rocca, P.L.Rotoloni, TRANS, AMS, 17(1973)172
24. F.List and P.Knuclson, Nucl.Tech., 20(1973)103
25. Docket 50285- 85(1973)
26. Docket 50206-188(1973)
27. Docket 50334- 50(1973)

SN 841-74-24

28. Docket 50321-66(1973)
29. Docket 50317-78(1973)
30. Docket 50312-68(1973)
31. Docket 50247-98(1973)
32. Docket 50219-228(1972)
33. Docket 50545-228(1973)
34. Docket 50346-55(1973)
35. Docket 50336-49(1973)
36. Docket 50335-40(1973)
37. Docket 50368-37(1973)
38. Docket 50003-159(1973)
39. Docket 50304-75(1973)